

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

THÈSE PAR ARTICLES PRÉSENTÉE À
L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

COMME EXIGENCE PARTIELLE
À L'OBTENTION DU
DOCTORAT EN GÉNIE
Ph. D.

PAR
Jean-Philippe BOUDREAULT

CONTRÔLE DE L'INCERTITUDE PAR UNE APPROCHE MULTIDISCIPLINAIRE
LORS DE LA CARACTÉRISATION ENVIRONNEMENTALE
DES SITES URBAINS CONTAMINÉS

MONTRÉAL, LE 4 MAI 2016

©Tous droits réservés, Jean-Philippe Boudreault, 2016

©Tous droits réservés

Cette licence signifie qu'il est interdit de reproduire, d'enregistrer ou de diffuser en tout ou en partie, le présent document. Le lecteur qui désire imprimer ou conserver sur un autre media une partie importante de ce document, doit obligatoirement en demander l'autorisation à l'auteur.

PRÉSENTATION DU JURY

CETTE THÈSE A ÉTÉ ÉVALUÉE

PAR UN JURY COMPOSÉ DE :

M. Jean-Sébastien Dubé, ing., Ph.D., directeur de thèse
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

M. Jean Arteau, ing., Ph.D., président du jury
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. François Duhaime, ing., Ph.D., membre du jury
Département de génie de la construction à l'École de technologie supérieure

M. Erwan Gloaguen, ing. Ph.D., examinateur externe
Centre Eau Terre Environnement à l'Institut national de la recherche scientifique

ELLE A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC

LE 24 MARS 2016

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

AVANT-PROPOS

La présente thèse doctorale est structurée en format « articles intégrés ». Au cours de cette recherche doctorale, trois articles ont été publiés dans des revues scientifiques. La publication de ces articles dans des revues internationales a amené la rédaction de ces trois articles en anglais. Par souci de fidélité à la version publiée, chacun des articles est présenté en anglais. Les chapitres généraux et de synthèse de la présente thèse sont toutefois rédigés en français.

Bien que chaque article publié représente un « tout » sur un aspect relativement « distinct » de cette recherche doctorale, les trois articles sont étroitement interreliés. Pour chaque article, l'état des connaissances s'y rapportant est présenté. Afin de minimiser les répétitions dans la présente thèse, le chapitre portant sur la revue de littérature présente les connaissances globales du domaine dans lequel la recherche doctorale s'inscrit. Le lecteur trouvera toutefois une synthèse « spécialisée » de la revue de littérature au sein de chaque article et fonction du sujet de celui-ci.

REMERCIEMENTS

Au fil des années passées sur ce projet, j'ai eu la chance de côtoyer des gens formidables et de faire des rencontres enrichissantes. Je ne saurais remercier, à la juste valeur, tous ces gens qui m'ont permis de mener, de près ou de loin, ce projet jusqu'à la fin.

Parmi ceux-ci, je tiens tout d'abord à dire un énorme merci à mon directeur de thèse, Jean-Sébastien Dubé. Durant toutes les années de mes études supérieures, il a su m'apporter un parfait équilibre d'encadrement et d'autonomie qui a permis de me développer pleinement, non seulement au sein de la recherche mais également de manière professionnelle. Sa constante confiance m'a amené à m'engager au sein de plusieurs autres activités professionnelles en parallèle à mes études supérieures, notamment des charges de séances de travaux pratiques, des charges complètes de cours, de multiples encadrements partiels d'étudiants stagiaires et des contrats de recherche très enrichissants.

Je tiens aussi à remercier chaleureusement Michel Chouteau et Denis Marcotte, tous deux professeurs à la Polytechnique, pour m'avoir initié et encadré durant mes travaux portant sur la géophysique et la géostatistique. En plus de me fournir un mentorat fort généreux et un précieux appui, ils m'ont permis de découvrir des disciplines grandement intéressantes et enrichissantes.

Je tiens à remercier les membres du jury, Jean Arteau (ÉTS), François Duhaime (ÉTS) et Erwan Gloaguen (INRS), pour l'évaluation de cette thèse. Par ailleurs, je tiens à remercier les membres du jury de l'examen doctoral, François Brissette (ÉTS), Frédéric Monette (ÉTS) et Rosa Galvez-Cloutier (Université Laval) pour leurs précieux commentaires qui ont permis de bien aligner dès le départ la présente recherche.

Je remercie également l'ensemble des étudiants côtoyés dans les différents laboratoires universitaires lors de mes études supérieures : le DRAME, la STEPPE, le LG2 et le laboratoire de géophysique et de géostatistique de la Polytechnique. Ce fut des moments

VIII

mémorables passés en votre compagnie. Je tiens aussi à souligner tout particulièrement la précieuse contribution de Régis Bost (stagiaire français), de Mirela Sona (initialement étudiante à la maîtrise, actuellement au doctorat) et des autres stagiaires d'outre-mer (Julie Ternisien, Kun Li, Olivier Beal, Vivien Darras). Je remercie bien sûr toute autre personne qui ont su me conseiller que ce soit directement ou indirectement lors de ce périple.

Je remercie également la firme Quéformat (qui s'est joint en cours de route au Groupe Qualitas), plus particulièrement, Éric Hardy et Michel Dussault, pour leur support technique et leur compréhension durant ma période travail-études. Je remercie également mes autres collègues de travail de cette époque qui n'ont cessé de m'encourager à terminer mes études doctorales.

Je remercie ma famille et mes amis qui ont toujours cru à cette fin tant attendue...

Je remercie ma tendre amoureuse Evelyne pour sa compréhension durant toutes ses années passées à poursuivre ce projet. Bien des soirées de couple ont été mises de côté afin de mener à terme ce projet. Bien qu'ils soient encore jeunes, je remercie mes enfants, Eliane, Emmanuel et Damien, pour leur patience lorsque papa devait encore travailler au lieu de faire le clown avec eux...

Finalement, je dédie cette thèse à mon cher père qui aurait tant aimé la lire avant son dernier long voyage...

À TOUS, UN GRAND MERCI!

CONTRÔLE DE L'INCERTITUDE PAR UNE APPROCHE MULTIDISCIPLINAIRE LORS DE LA CARACTÉRISATION ENVIRONNEMENTALE DES SITES URBAINS CONTAMINÉS

Jean-Philippe BOUDREAULT

RÉSUMÉ

La réhabilitation des sites urbains contaminés est l'un des défis stratégiques en vue d'une urbanisation durable et ce, à l'échelle planétaire. Toutefois, plusieurs obstacles affectent le réaménagement de ces sites urbains contaminés. Ces obstacles découlent d'une même source : l'incertitude. Le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation environnementale est donc un facteur clé permettant de surmonter les obstacles rencontrés. Bien qu'il représente un défi important, le contrôle de cette incertitude est pourtant peu étudié et maîtrisé, voire inexistant dans la pratique. La présente recherche doctorale porte ainsi sur le sujet du contrôle de cette incertitude, c'est-à-dire sa quantification dans un premier temps puis sa réduction.

L'objectif premier de recherche a été de développer et de formuler une approche permettant de contrôler l'incertitude globale associée aux études de caractérisation des sites urbains contaminés. La stratégie de recherche a reposé sur la caractérisation de l'hétérogénéité à travers trois concepts interreliés : 1) la géométrie physique interne, 2) la représentativité des échantillons et 3) la distribution spatiale de la contamination.

Un réel site urbain contaminé, lequel est caractérisé par la présence d'un remblai hétérogène lui conférant une très forte hétérogénéité, a été utilisé pour réaliser les travaux de recherche et pour valider l'approche globale élaborée. La géométrie physique interne a été caractérisée de manière pratiquement continue selon une approche d'auscultation géophysique multi-méthodes (induction électromagnétique, magnétométrie, tomographie de résistivité électrique et radar géologique). La représentativité des échantillons a été étudiée en comparant l'échantillonnage conventionnel par grappillage à une procédure alternative d'échantillonnage fondée sur les principes de la théorie de l'échantillonnage des matières morcelées. La distribution spatiale de la contamination a été caractérisée selon une procédure géostatistique par simulations conditionnelles permettant une optimisation de l'emplacement de stations d'échantillonnage supplémentaires.

L'approche d'auscultation géophysique multi-méthodes a permis d'améliorer la schématisation de la structure, tant verticale qu'horizontale, de l'hétérogénéité physique du remblai urbain tout en permettant une sectorisation du site en zones d'hétérogénéités distinctes. Cette schématisation améliorée de l'hétérogénéité à l'échelle du site permet notamment la mise en place d'une stratégie d'échantillonnage optimisée qui tient compte de chacune des zones d'hétérogénéités distinctes identifiées.

La procédure alternative d'échantillonnage développée a permis de quantifier la reproductibilité d'un échantillonnage et ce, pour chacune de ses sous-étapes (c.-à-d. du

terrain jusqu'à l'analyse en laboratoire). La quantification de cette reproductibilité à chacune des sous-étapes d'échantillonnage permet d'assurer non seulement une meilleure compréhension de l'hétérogénéité à l'échelle de l'échantillon mais également l'optimisation de toute procédure d'échantillonnage en vue de permettre l'atteinte d'une représentativité désirée. Il a d'ailleurs été démontré que la méthode d'échantillonnage développée a permis une amélioration de la reproductibilité (et par conséquent de la représentativité) de l'échantillonnage par un facteur moyen de 10 comparativement à un échantillonnage conventionnel par grappillage.

La procédure géostatistique par simulations conditionnelles a permis en premier lieu de déterminer la structure spatiale d'une contamination dans un remblai urbain, puis de quantifier à la fois l'incertitude locale et l'incertitude globale spécifique à un plan d'échantillonnage donné. La procédure développée a permis non seulement d'optimiser l'emplacement et le nombre de stations d'échantillonnage durant des phases complémentaires de caractérisation suivant un algorithme rationnel mais également de catégoriser le site en zones distinctes (volume à traiter, volume incertain et volume à faible risque) selon les probabilités de dépassement d'une valeur-seuil légale. Cette catégorisation du site est basée sur deux bornes décisionnelles dont les valeurs s'ajustent selon l'hétérogénéité du site.

Bref, l'approche développée dans la présente recherche doctorale permet de fournir un processus formel et rationnel de la caractérisation de l'hétérogénéité d'un site urbain contaminé, autant à l'échelle de l'échantillon que du terrain. Cette caractérisation de l'hétérogénéité mène ainsi au contrôle de l'incertitude globale d'une étude de caractérisation, à la fois sa quantification et sa réduction et à l'obtention d'un plan d'échantillonnage optimisé.

Mots-clés : Incertitude, Sites contaminés, Géophysique, Échantillonnage, Représentativité, Géostatistique

UNCERTAINTY CONTROL BY A MULTIDISCIPLINARY APPROACH DURING THE ENVIRONMENTAL CHARACTERIZATION OF CONTAMINATED SITES

Jean-Philippe BOUDREAULT

ABSTRACT

The remediation of brownfields is a strategic challenge for sustainable urbanization at the global scale. However, several obstacles affect brownfield remediation. These barriers stem from the same source: uncertainty. Control of uncertainty in environmental characterization is a key factor to overcome these obstacles. Nevertheless, uncertainty control has been insufficiently studied and is rarely mastered or even nonexistent in practice. This doctoral research focuses on uncertainty control, through its quantification and minimization.

Thus, the primary research goal was to develop and formulate an approach that could provide control on the overall uncertainty associated with brownfield characterization studies. The research strategy was based on improving the characterization of site heterogeneity across three interrelated concepts: 1) the internal geometry of the site, 2) the representativeness of sampling and 3) the spatial distribution of the contamination.

A real brownfield site, having a very large physical and chemical heterogeneity due to the presence of a heterogeneous backfill (urban fill), was used to carry out the research and to validate the developed approach. Internal site geometry was characterized using a multi-method geophysical survey, including magnetometry, electromagnetic induction, electrical resistivity imaging, and ground-penetrating radar. Sampling representativeness was studied by comparing grab sampling to an alternative sampling procedure developed herein based on the principles from Gy's Sampling Theory. The distribution of contaminants was characterized according to a geostatistical procedure based on conditional simulations that optimizes the location of additional sampling stations.

The multi-method geophysical survey has improved the mapping of the internal physical structure of the fill, both vertically and horizontally, while allowing a delineation of zones of distinctive heterogeneity. This improved mapping of heterogeneity across the site allowed an optimized sampling strategy that took into account each of the distinctive heterogeneity zones.

The developed alternative sampling procedure has quantified the reproducibility of sampling at each of its sub-steps (from field to chemical analysis in laboratory). The quantification of this reproducibility at each sampling sub-steps ensured not only a clearer understanding of the heterogeneity at the sample scale but also the optimization of any sampling procedures to achieve a desired representativeness. Moreover, it was shown that the alternative sampling procedure was more reproducible by a mean factor of 10 compared to conventional grab sampling.

The geostatistical procedure determined the spatial structure of contamination in the urban fill and quantified both the local uncertainty and the overall uncertainty specific to a given sampling plan. Moreover, the developed procedure was used to optimize the location and number of sampling stations during additional stages of characterization following a rational algorithm. It was also used to categorize the site into separate soil volumes (volume to be treated, uncertain volume and low risk volume) according to the probability of exceeding a regulatory threshold. This categorization of the site is based on two decision-making bounds which are adjusted according to the heterogeneity of the site.

In short, the developed approach in this doctoral research provides a formal and rational framework for characterizing the heterogeneity of a brownfield, both at sample scale and field scale. This characterization of heterogeneity leads to the control of the overall uncertainty during environmental assessment, namely by its quantification and its reduction, and the achievement of an optimized sampling plan.

Keywords: Uncertainty, contaminated sites, geophysics, sampling, representativity, geostatistics

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE : CARACTÉRISATION DES SITES CONTAMINÉS	5
1.1 Contexte des sites urbains contaminés.....	5
1.2 Caractérisation conventionnelle des sites urbains contaminés	6
1.2.1 Campagne d'échantillonnage.....	7
1.2.2 Interprétation et prise de décision.....	12
1.2.3 Spatialisation des résultats analytiques.....	14
1.3 Procédures de caractérisation de seconde génération	15
1.3.1 Approche triade.....	15
1.3.2 Techniques analytiques de terrain.....	17
1.3.3 Qualité des données recueillies lors de la caractérisation de sites contaminés	20
1.4 Incertitude	21
1.4.1 Hétérogénéité	23
1.4.2 Qualification d'un échantillonnage : la représentativité	24
1.4.3 Échantillonnage par grappillage	27
1.5 Lacunes des procédures actuelles	28
CHAPITRE 2 HYPOTHÈSE, OBJECTIFS ET STRATÉGIE DE RECHERCHE	32
2.1 Objectifs de la recherche.....	32
2.2 Cadre théorique sommaire et originalité de la recherche.....	35
2.2.1 Géométrie physique interne	35
2.2.2 Représentativité des échantillons.....	37
2.2.3 Distribution spatiale de la contamination	38
2.3 Site à l'étude.....	39
CHAPITRE 3 GEOPHYSICAL CHARACTERIZATION OF CONTAMINATED URBAN FILLS	42
3.1 Introduction.....	43
3.2 Materials and methods	46
3.2.1 Site location	46
3.2.2 Fill description	47
3.2.3 Geophysical characterization of the fill	50
3.2.4 Validation of geophysical imaging by trench excavation.....	54
3.3 Results.....	55
3.3.1 EM conductivity.....	55
3.3.2 Magnetic survey.....	56
3.3.3 ERI	58
3.3.4 GPR.....	61
3.4 Discussion	61

3.4.1	Internal structure of the fill	62
3.4.2	Correlation between geophysical results and proportion of debris.....	64
3.4.3	Spatial variation of the physical heterogeneity	67
3.5	Conclusions	67
CHAPITRE 4 ANALYSIS OF PROCEDURES FOR SAMPLING CONTAMINATED SOIL USING GY'S SAMPLING THEORY AND PRACTICE		70
4.1	Introduction	71
4.1.1	A review of STP principles applied to environmental soil sampling	73
4.1.2	Objectives of the study.....	77
4.2	Materials and methods	78
4.2.1	Study site and sampling locations	78
4.2.2	Alternative sampling procedure (ASP)	79
4.3	Results and discussion	84
4.3.1	Median metal concentrations	84
4.3.2	Theoretical sampling variance	85
4.3.3	Experimental sampling variance	88
4.3.4	Comparison between theoretical and experimental sampling variances	91
4.3.5	Sampling representativeness and regulatory threshold values.....	94
4.4	Conclusions	96
CHAPITRE 5 QUANTIFICATION AND MINIMIZATION OF UNCERTAINTY BY GEOSTATISTICAL SIMULATIONS DURING THE CHARACTERIZATION OF CONTAMINATED SITES: 3-D APPROACH TO A MULTI-ELEMENT CONTAMINATION		99
5.1	Introduction	100
5.1.1	Objectives	103
5.2	Material and methods.....	103
5.2.1	Study site.....	103
5.2.2	Geostatistical procedure.....	105
5.3	Results and discussion	116
5.3.1	Summary description of the data	116
5.3.2	Horizontal and vertical variograms.....	121
5.3.3	Conditional simulations	126
5.3.4	Bounds α and β	128
5.3.5	Optimization of the sampling plan and quantification and minimization of the uncertainty	131
5.4	Conclusions	137
CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE ET CONTRIBUTIONS DE LA RECHERCHE		141
6.1	Caractérisation de la géométrie physique interne : retour sur l'article 1	141
6.1.1	Résultats complémentaires potentiels	143
6.2	Caractérisation de la représentativité de l'échantillonnage : retour sur l'article 2.....	144
6.2.1	Résultats complémentaires potentiels	146
6.3	Caractérisation de la distribution spatiale de la contamination : retour sur l'article 3	147

6.3.1	Résultats complémentaires potentiels	150
6.4	Discussion globale sur la caractérisation de l'hétérogénéité	151
6.5	Discussion complémentaire relative à la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination	153
6.5.1	Apport de l'auscultation géophysique au sein de la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination	153
6.5.2	Impact d'une procédure d'échantillonnage sur la détermination de la structure spatiale d'une contamination	156
6.5.3	Intérêt de l'intégration des mesures analytiques de terrain lors de la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination	160
CONCLUSIONS.....		163
LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....		169

LISTE DES TABLEAUX

	Page
Table 4.1	Calculation of the mineralogical factor for each metal for median concentrations.....86
Table 4.2	Theoretical relative variances $s^2(\text{THEO})$ [$s^2(\text{THEO}) = s^2(\text{FSE}) + s^2(\text{GSE})$] ...87
Table 4.3	Experimental relative variances $s^2(\text{EXP})$89
Table 4.4	Comparison between theoretical and experimental relative variance for Pb93
Table 5.1	Descriptive statistics on the concentrations in mg/kg of metals and maximum pollution indices117
Table 5.2	Comparison of the parameters of the variograms for Pb122
Table 5.3	Sensitivity analysis of the low-risk volume in relation to bound α and to the probability $P\alpha$ (with the total set)128
Table 5.4	Sensitivity analysis of the volume to be treated in relation to bound β (with the total set).....129
Table 5.5	Sensitivity analysis of the uncertain volume in relation to bound α and β (with the total set).....130
Table 5.6	Compilation of the known data larger than 3 (i.e. threshold C) in relation to the categorization of soil136
Table 5.7	Calculated volume for initial subset, optimal subset and total set and the global uncertainty and variance associated with these sampling plans (number of sampling stations in parentheses)137
Tableau 6.1	Particularités géophysiques notées par zone d'hétérogénéités distinctes.....155
Tableau 6.2	Comparaison des modèles de variogrammes avec variabilité ajoutée159

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1 Localisation en plan des stations d'échantillonnage selon diverses approches.....	8
Figure 1.2 Localisation en coupe des points.....	11
Figure 1.3 Approche géométrique par polygones.....	14
Figure 1.4 Composantes primaires de l'approche triade	16
Figure 1.5 Impact des techniques analytiques de terrain sur l'incertitude globale.....	19
Figure 1.6 Schématisation de l'erreur systématique et de l'erreur aléatoire à l'aide d'une courbe de densité de probabilité.....	25
Figure 1.7 Représentation schématique de la représentativité.....	27
Figure 2.1 Conceptualisation du cadre idéationnel de la recherche	33
Figure 3.1 General view (plan view) of the study site.....	48
Figure 3.2 Pictures of the fill taken during the mass excavation phase carried out after the geophysical characterization	49
Figure 3.3 Location of a) EM lines, and b) MAG lines.....	51
Figure 3.4 Location of a) ERI lines, and b) GPR lines.....	52
Figure 3.5 Results of a) EM induction (i- vertical magnetic dipole and ii- horizontal magnetic dipole), and b) MAG gradiometry	59
Figure 3.6 Profiles of a) ERI, and b) GPR.....	60
Figure 3.7 Profiles made along the A-A' transect with data from a) conventional sampling (Qualitas-Quéformat study in 2004) b) geophysical methods (i- electrical resistivity and ii- ground-penetrating radar), and c) high-density sampling (trench excavation in 2007)	63
Figure 3.8 Correlation between the electrical resistivity and the proportion of debris	65
Figure 3.9 Depth profiles for (i) the amount of debris, (ii) the electrical resistivity, and (iii) the reflected wave amplitude in three trenches E-1, C-2, and G-3	66
Figure 4.1 Schematization of the 5 stages of the ASP and the 2 stages of the GSP.....	79

Figure 4.2	Linear pile and primary increments	80
Figure 4.3	Probability of making soil classification errors based on the representativeness of the sampling procedure.....	95
Figure 5.1	Histogram and distribution function (blue line) for	119
Figure 5.2	3-D representation of the MPIs	120
Figure 5.3	Horizontal and vertical variograms for Pb before (concentration in mg/kg on the left) and after transformation (dimensionless PIs on the right).....	121
Figure 5.4	Horizontal and vertical variograms on the anamorphosed MPIs	124
Figure 5.5	Ratio of the variogram to the square of the madogram for A) horizontal variogram and B) vertical variogram	125
Figure 5.6	3-D mapping of A) simulation variance and B) probability of exceeding threshold C for 100 conditional simulations from the complete dataset	127
Figure 5.7	3-D Maps of exceedance probabilities (top) and simulation variance (bottom) for A) initial subset of 8 sampling stations (left), B) optimal subset of 19 sampling stations (middle) and C) total set of 38 sampling stations (right) ..	132
Figure 5.8	Evolution of the global uncertainty (in blue) and the global variance (in black) for each step of optimization.....	133
Figure 5.9	Evolution of the relative difference of the global uncertainty (in blue) and the global variance (in black) between two successive steps.....	135
Figure 6.1	Sectorisation du site en zone d'hétérogénéités distinctes.....	156
Figure 6.2	Comparaison des modèles de variogramme avec variabilité ajoutée a) selon la procédure alternative d'échantillonnage (ASP) et b) selon la procédure d'échantillonnage par grappillage (GSP)	158

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

3-D	3 dimensions
ADEME	Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie de France
ASP	<i>Alternative sampling procedure</i>
ASTM	<i>ASTM International</i>
CCME	Conseil canadien des ministres de l'environnement
Cd	Cadmium
Co	Cobalt
CE ₂	<i>Long-range heterogeneity fluctuation error</i>
CE ₃	<i>Periodic heterogeneity fluctuation error</i>
CEAEQ	Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec
Cr	Chrome
Cu	Cuivre
CV	<i>Coefficient of variation</i>
DEP	<i>Department of Environmental Protection of Government of Western Australia</i>
DOEGN	<i>Department of environment of Government of Nunavut</i>
EDP	<i>Environmental Protection Department of Government of the Hong Kong</i>
EGE	Erreur globale d'estimation
EM	<i>Electromagnetic induction</i>
EPASA	<i>Environment Protection Authority of Government of South Australia</i>
ERI	<i>Electric resistivity imaging</i>
ETE	Erreur totale d'échantillonnage
EXP	<i>Experimental sampling</i>

FSE	<i>Fundamental sampling error</i>
GEE	<i>Global Estimation error</i>
GPR	<i>Ground-penetrating radar</i>
GSE	<i>Grouping and segregation error</i>
GSP	<i>Grab sampling procedure</i>
HC	Hétérogénéité de constitution
HD	Hétérogénéité de distribution
IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>
ICP-OES	<i>Inductively coupled plasma optical emission spectroscopy</i>
ISO	<i>International Organization for Standardization</i>
ITRC	<i>Interstate technology and regulatory council</i>
JCGM	<i>Joint Committee for Guide in Metrology</i>
MAG	<i>Magnetic</i>
MCS	Modèle conceptuel du site
MDDELCC	Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques du Québec
MDDEP	Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs du Québec
ME	<i>Materialization error</i>
MEBC	<i>Ministry of Environment of Government of British Columbia</i>
MEF	Ministère de l'Environnement et de la Faune du Québec
MENV	Ministère de l'Environnement de Québec
MEO	<i>Ministry of the Environment of Ontario</i>
Mn	Manganèse

MPI	<i>Maximum pollution index</i>
Ni	Nickel
NSERC	<i>National Science and Engineering Research Council of Canada</i>
NSWEPA	<i>New South Wales Environment Protection Authority</i>
PAH	<i>Polycyclic aromatic hydrocarbons</i>
Pb	Plomb
PE	<i>Preparation error</i>
PI	<i>Pollution index</i>
QA/QC	<i>Quality assurance and quality control</i>
QL	<i>Quantification limit</i>
Sn	Étain
SPIGEC	<i>Saskatchewan Petroleum Industry / Government Environmental Committee</i>
STP	<i>Sampling Theory and Practice</i>
TAE	<i>Total analytical error</i>
TEMM	Théorie de l'échantillonnage des matières morcelées
THEO	<i>Theoretical sampling</i>
TRNEE	Table ronde nationale sur l'environnement et l'économie
TSE	<i>Total sampling error</i>
UNFPA	Fonds des Nations Unis pour la population
USACE	<i>Army Corps of Engineers</i> des États-Unis
USDOE	<i>Department of Energy</i> des États-Unis
USEPA	<i>Environmental Protection Agency</i> des États-Unis
VU	<i>Volumetric unit</i>

XXIV

Zn

Zinc

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

α	<i>Lower probability bound</i>
a_L	Concentration massique réelle de l'analyte d'intérêt dans le lot
a_R	Concentration massique de l'analyte d'intérêt dans l'échantillon
a_L	<i>Analyte content in the lot</i>
a_{max}	<i>Analyte content in the coarsest fragments of the lot</i>
b	<i>Exponent for liberation factor determination</i>
β	<i>Higher probability bound</i>
c	<i>Mineralogical factor</i>
d_l	<i>Analyte particle liberation diameter</i>
$d_{min}(x_0)$	<i>Horizontal distance with point x_0</i>
d_N	<i>Nominal particle size at 95% passing</i>
f	<i>Particle shape factor</i>
g	<i>Granulometric factor</i>
I	<i>Indicatrice value (0 or 1)</i>
K	<i>Number of realizations</i>
h	<i>distance vector for variogram model</i>
$IP_{Z(x_0)}$	<i>Pollution index calculated for a specific contaminant at a given point</i>
i^{th}	<i>Specific rank for value</i>
l	<i>Liberation factor</i>
L	<i>Number of selection parameters</i>
μ	<i>Mean</i>
m	<i>Number of legal thresholds</i>

m^2	<i>Square of the relative bias (accuracy)</i>
$m^2(\text{EGE})$	Carré de la moyenne des erreurs globales d'estimation
$m^2(\text{TSE})$	<i>Bias of total sampling error</i>
$m(\text{EGE})$	Moyenne des erreurs globales d'estimation
n	<i>Number of observations (known data)</i>
M_S	<i>Sample mass</i>
M_L	<i>Mass of the lot</i>
N	<i>Number of increments in sample</i>
P	<i>Probability</i>
$P(x)$	<i>Probability at the simulated unit x</i>
Par_i	i^{th} selection parameter
$\bar{P}(\alpha)$	<i>Average probability of exceeding threshold S within the low-risk volume</i>
ρ_A	<i>Analyte density</i>
r^2	<i>Sampling representativeness</i>
r_o^2	<i>Fixed allowable representativeness</i>
$r^2(\text{EGE})$	Représentativité d'un échantillonnage calculée à partir des erreurs globales d'estimation
S	<i>Threshold</i>
s^2	<i>Variance (reproducibility)</i>
$s^2(\text{EGE})$	Variance des erreurs globales d'estimation
$s^2(\text{EXP})$	<i>Experimental relative variance</i>
$s^2(\text{FSE})$	<i>Variance of fundamental sampling error</i>
$s^2(\text{GSE})$	<i>Variance of grouping and segregation error</i>

$s^2(\text{ME})$	<i>Variance of materialization error</i>
$s^2(\text{PE})$	<i>Variance of preparation error</i>
$s^2(\text{THEO})$	<i>Theoretical sampling variance</i>
$s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$	<i>Theoretical sampling variance of the alternative sampling procedure</i>
$s^2(\text{THEO})_{\text{GSP}}$	<i>Theoretical sampling variance of the grab sampling procedure</i>
$s^2(\text{TSE})$	<i>Variance of total sampling error</i>
$s(\text{EGE})$	<i>Écart-type des erreurs globales d'estimation</i>
S_{ph}	<i>Spherical model of an anisotropic variogram</i>
$S_{tot}(x_0)$	<i>Total score attributed to the location x_0</i>
σ^2	<i>Variance</i>
$\sigma^2(x)$	<i>Variance of K simulated values at the simulated unit x</i>
$T_i(x n)$	<i>Simulated MPI value of the i^{th} realization at the simulated unit x</i>
$\bar{T}(x n)$	<i>Average of K simulated values at the simulated unit x</i>
U	<i>Total number of units</i>
V_{lr}	<i>Low-risk volume</i>
V_{tot}	<i>Total volume</i>
V_{tr}	<i>Volume to be treated</i>
V_U	<i>Volumetric unit</i>
V_{unc}	<i>Uncertain volume</i>
w_i	<i>Weight attributed to the i^{th} selection parameter</i>
x	<i>Simulated unit</i>
x_0	<i>Given point of an observation (known data)</i>
Z	<i>Specific contaminant</i>

$Z(x_0)$ *Concentration of the Z contaminant at the given point x_0*

z_{c_i} *Value of i^{th} threshold*

Unités de mesure

cm	Centimètre
cm ³	Centimètre cube
g	Gramme
kg	Kilogramme
L	Litre
m	Mètre
mL	Millilitre
mm	Millimètre
MHz	Mégahertz
mg	Milligramme
mS	Millisiemens
ns	Nanoseconde
nT	Nanotesla
ohm-m	Ohm-mètre
°C	Degré Celsius
µm	Micromètre

INTRODUCTION

À l'échelle planétaire, la population tend à se concentrer dans les régions urbaines. Au courant du XXe siècle, la population urbaine a connu une croissance majeure passant de 220 millions à 2,8 milliards d'habitants (UNFPA, 2007). En 2007, la population mondiale est parvenue à un point d'inflexion historique : plus de la moitié vit en milieu urbain (Véron, 2007). En 2014, cette proportion a atteint 54% (United Nations, 2014). Au Canada de même qu'au Québec, les chiffres confirment cette situation : la majorité de la population, soit plus de 80% en 2011, se regroupe dans les villes (Statistique Canada, 2011). Selon l'UNFPA (2007), l'urbanisation, c'est-à-dire l'accroissement de la population urbaine, sera d'une ampleur sans précédent durant les décennies à venir. D'ici 2050, on prévoit que, sur l'ensemble de la planète, 66% de la population vivra en ville, ce qui représenterait, en nombre d'habitants, près du double de la population urbaine de 1950 (UNFPA, 2007).

Si cette tendance se maintient, les régions urbaines devront donc répondre aux besoins d'une population sans cesse croissante et ainsi se développer davantage. Les défis en matière de développement urbain durable sont nombreux. Parmi ceux-ci, un défi de grande envergure est l'utilisation efficace du territoire afin de réduire l'étalement urbain et ainsi nos impacts sur les écosystèmes environnants. Le réaménagement et la réhabilitation des sites urbains contaminés, également appelés « friches industrielles » ou *brownfields* en anglais, fait donc partie de ces défis stratégiques en vue d'une urbanisation durable.

Les sites urbains contaminés sont des propriétés souvent sous-utilisées ou même abandonnées et inoccupées pour lesquelles des activités antérieures, généralement de type industriel ou commercial, ont causé une contamination réelle ou probable de l'environnement. Aux États-Unis, le nombre de sites urbains contaminés s'élève entre 500 000 et 1 000 000 (Table ronde nationale sur l'environnement et l'économie - TRNEE, 2003). En Europe, le nombre de ces sites est estimé à 3 000 000 (ADEME, 2014). Au Canada, plus de 30 000 sites urbains contaminés seraient présents (TRNEE, 2003).

Portant atteinte à la qualité de vie des quartiers tout en constituant une pollution visuelle, ces sites représentent à la fois un risque pour la santé et l'environnement et une perte importante de bénéfices publics. En effet, seulement au Canada, cette perte en bénéfices de tous genres a été évaluée, en 2003, à sept milliards de dollars par an (TRNEE, 2003). Toujours selon la TRNEE (2003), de nombreux avantages tant économiques, environnementaux que sociaux sont reliés au réaménagement des sites urbains contaminés, notamment l'amélioration de la productivité économique des terrains avoisinants, l'augmentation des recettes tirées des impôts, la réduction des coûts d'infrastructure pour les municipalités, la diminution des risques pour la santé, la préservation des terres agricoles, la réduction de la pollution de l'air et la régénération des quartiers.

Dans leur rapport intitulé « Réhabiliter le passé, construire l'avenir : une stratégie nationale des sites urbains contaminés réhabilitables pour le Canada », la TRNEE (2003) soulèvent les principaux obstacles susceptibles d'affecter le réaménagement des sites urbains contaminés qui, pour la majorité d'entre eux, présentent un fort potentiel : le manque d'accès aux capitaux, les risques légaux et l'accès limité à la protection par assurance. Ces obstacles découlent d'une même source : l'incertitude. Cette incertitude est directement liée à une mauvaise connaissance et compréhension du site investigué, menant ainsi à l'obtention d'un portrait non fiable du site et à la prise de décision non optimale des interventions requises. Cette incertitude, découlant en très grande partie de l'incertitude inhérente à la caractérisation environnementale, génère donc des risques pour les assureurs et les investisseurs, les rendant ainsi moins favorables à mener vers l'avant un projet dans lequel la réhabilitation d'un site urbain contaminé est nécessaire. Le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation environnementale est donc le facteur clé permettant de surmonter ces obstacles. Bien qu'il représente un défi important, le contrôle de cette incertitude est pourtant peu étudié et maîtrisé, voire inexistant dans la pratique.

Par conséquent, la présente recherche doctorale porte sur le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation environnementale des sites urbains contaminés. La structure de cette thèse se divise en 7 parties. Le chapitre 1 comprend la revue de littérature se rapportant au sujet de

recherche traité. Ce bilan de l'état des connaissances et des pratiques actuelles permet de fixer le cadre théorique dans lequel la présente recherche évolue tout en soulevant les lacunes existantes. Sur cette base, le chapitre 2 porte ensuite sur la formulation des hypothèses et des objectifs de recherche. Ce chapitre permet également de soulever l'importance et l'originalité de la recherche présentée ainsi que de définir la stratégie expérimentale élaborée. Par la suite, les chapitres 3, 4 et 5 présentent les trois articles scientifiques (en anglais) publiés dans des revues internationales et portant sur trois aspects interreliés de la recherche réalisée. Puis, le chapitre 6 présente une discussion générale concernant les résultats obtenus tout en faisant un retour sur les hypothèses et objectifs préalablement élaborés. Cette discussion générale s'avère être un complément des discussions spécifiques présentées au sein de chacun des trois articles. Le chapitre 7 termine la thèse en présentant les conclusions générales de la recherche réalisée tout en soulignant les contributions originales pouvant être apportées aux pratiques actuelles.

CHAPITRE 1

REVUE DE LITTÉRATURE : CARACTÉRISATION DES SITES CONTAMINÉS

1.1 Contexte des sites urbains contaminés

Les sites urbains contaminés sont l'héritage du déclin de nombreuses activités industrielles. Ces sites, disséminés à travers le tissu urbain, représentent un fardeau pour les agglomérations urbaines et freinent leur développement. En raison de nombreuses phases de restructuration telles que le démantèlement et la construction de bâtiments servant à des activités diversifiées, le sol des secteurs industriels et commerciaux constitue généralement des milieux anthropiques fortement hétérogènes et complexes (Schwartz et al., 2000). En effet, les diverses activités successives ayant eu lieu sur un site de même que les changements de l'emprise des bâtiments existants et le remblayage à l'aide de matériaux exogènes ont engendré la présence d'une variété de matériaux distincts dans le sol de ces secteurs.

L'appellation « remblai hétérogène urbain » est donc attribuée à ces sites ou parcelles de terrain caractérisés par la présence de matériaux variés. Plus précisément, les remblais hétérogènes urbains, qui représentent un sous-ensemble des sites urbains contaminés, sont constitués d'un mélange de sol, de débris (déchets domestiques et matériaux de démolition – bois, brique, béton, métal, etc.) et de résidus (résidus d'incinération – cendre, scorie, mâchefer, etc.) de différentes tailles entremêlé avec d'anciennes structures enfouies (réseaux et ouvrages souterrains, fondations profondes, etc.) et dont la contamination mixte est probable (principalement des métaux et des hydrocarbures aromatiques polycycliques). Il est à noter que l'adjectif « hétérogène » est superfluetatoire par le fait que ces sites ne peuvent, par leur constitution, être considérés homogènes (de plus, le sol est par définition un matériau hétérogène). Toutefois, il a décidé, dans le présent document, de conserver l'appellation d'origine « remblai hétérogène urbain » qui s'est répandue dans la pratique.

Puisque les remblais hétérogènes urbains possèdent une très forte variabilité de leurs propriétés physiques et chimiques, tant horizontalement que verticalement, la complexité de ces milieux est évidente. Afin d'évaluer la qualité de ce type de milieu, de comprendre leur fonctionnement et de prévoir les risques qu'ils posent pour l'environnement et la santé publique, les remblais hétérogènes urbains nécessitent des efforts de caractérisation considérables. Toutefois, ces milieux sont très peu étudiés par la communauté scientifique malgré qu'ils représentent à la fois un important problème et une solution à l'urbanisation durable des villes.

1.2 Caractérisation conventionnelle des sites urbains contaminés

La caractérisation des sites urbains contaminés, de même que la caractérisation de l'ensemble des terrains, repose sur des procédures développées dans les années 1970 et 1980 (Crumbling, Griffith et Powell, 2003). Ces procédures dites conventionnelles sont largement répandues et encore employées aujourd'hui par les praticiens.

Au Québec, plus particulièrement, le ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques¹ (MDDELCC) a élaboré le *Guide de caractérisation des terrains* afin de baliser la caractérisation des terrains contaminés au Québec ainsi que le travail des experts appelés à vérifier les études de caractérisation. La procédure décrite dans ce guide (MENV, 2003) présente une planification en trois phases : 1) caractérisation préliminaire de phase I, 2) caractérisation préliminaire de phase II et 3) caractérisation exhaustive de phase III.

La caractérisation préliminaire de phase I consiste à effectuer une revue de l'information existante, à établir l'historique du terrain et à inventorier les activités antérieures qui ont eu

¹ Le Ministère de l'Environnement au Québec a fait l'objet de changement de nom à plusieurs reprises depuis sa création. Par conséquent, l'acronyme utilisé pour l'identifier a suivi la présente séquence : MENVIQ, MEF, MENV, MDDP, MDDEP, MDDEFP et MDDELCC. Dans le présent document, l'acronyme actuel MDDELCC est employé pour désigner ce ministère de façon générale. Dans les références bibliographiques, l'acronyme correspondant à l'année de la publication est plutôt employé.

lieu sur le terrain. Cette première phase permet ainsi d'identifier les sources potentielles de contamination de même que les secteurs susceptibles d'être contaminés. Par la suite, la caractérisation préliminaire de phase II permet de confirmer la présence ou l'absence de contaminants et, en présence d'une contamination, d'évaluer son ampleur. Finalement, la caractérisation exhaustive de phase III permet de préciser l'étendue de la contamination et les volumes de matériaux contaminés en vue de proposer une intervention éclairée.

Ainsi, ces trois phases correspondent au cheminement conventionnel d'une étude de caractérisation d'un site urbain contaminé. Nécessitant plusieurs étapes successives et complémentaires, le processus de caractérisation conventionnelle est de ce fait itératif afin d'obtenir une représentation schématique du site et de la distribution de la contamination.

1.2.1 Campagne d'échantillonnage

La campagne d'échantillonnage est inévitable afin de mener à terme les phases II et III de la caractérisation d'un terrain. La première étape de cette campagne consiste à élaborer une stratégie d'échantillonnage.

Les critères considérés lors de la planification d'une stratégie d'échantillonnage sont : 1) les objectifs de l'étude de caractérisation, 2) la distribution anticipée de la contamination selon l'historique du site et les études antérieures réalisées à ce site, 3) l'accessibilité et la dimension du terrain et 4) la présence d'infrastructures ou de chemins préférentiels de transport des contaminants (MENV, 2003).

L'étape de l'élaboration d'une stratégie d'échantillonnage demeure primordiale au sein du processus de caractérisation puisque c'est au cours de cette étape que la localisation à la fois en plan et en coupe, la quantité et le type d'échantillons à prélever sont déterminés. La stratégie d'échantillonnage débute par une localisation en plan des stations, suivi d'une localisation en coupe des points de prélèvement et finalement le prélèvement même des

échantillons de sol. L'ensemble de cette procédure est décrite dans les guides du MDDELCC (MDDEP, 2008; 2010; MENV, 2003) et est reprise ici dans ses grandes lignes.

1.2.1.1 Localisation en plan des stations d'échantillonnage

Une campagne d'échantillonnage efficace requiert une disposition adéquate des stations d'échantillonnage (forages, puits d'exploration et/ou tranchées). Pour ce faire, il existe plusieurs approches afin de localiser ces stations en plan. La figure 1.1 schématise quatre de ces approches : a) l'échantillonnage aléatoire systématique, b) l'échantillonnage aléatoire simple, c) l'échantillonnage aléatoire stratifié et d) l'échantillonnage ciblé.

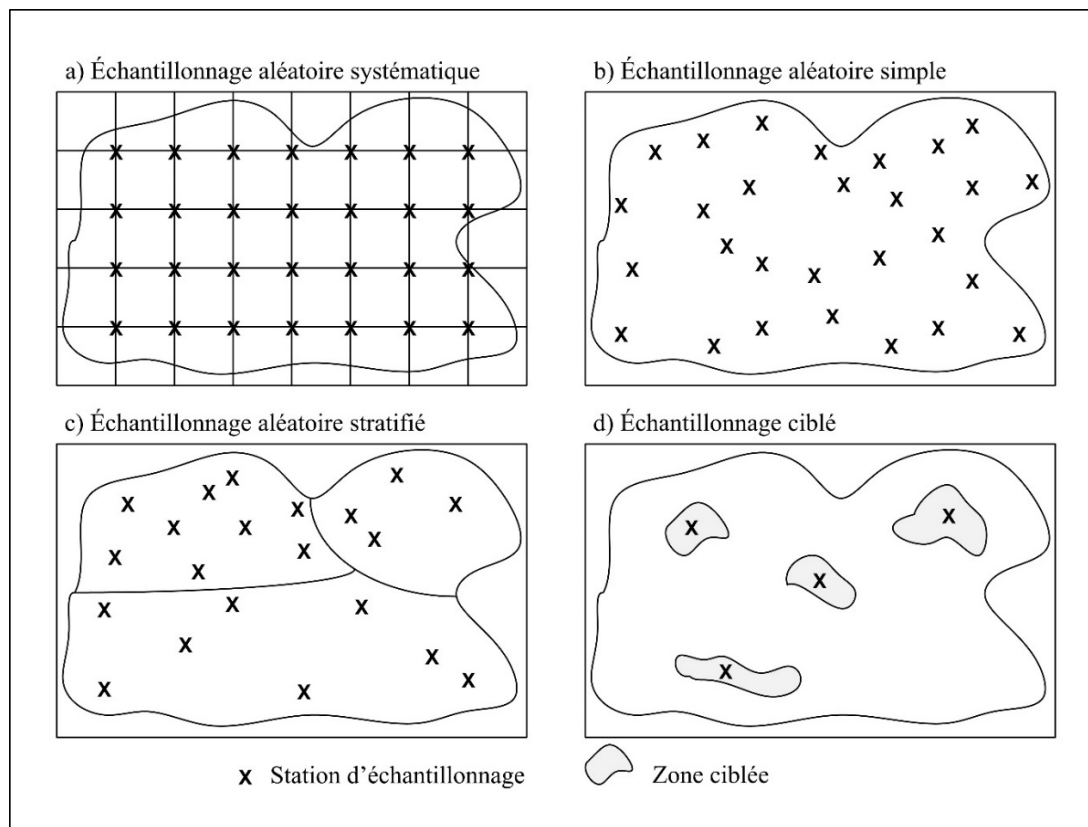


Figure 1.1 Localisation en plan des stations d'échantillonnage selon diverses approches
Adaptée de BRGM (2004)

L'approche d'échantillonnage est dite systématique lorsque la localisation en plan des stations est établie par rapport à une grille. Lorsque le positionnement de chacune des stations d'échantillonnage au sein de chaque cellule de la grille ou lorsque le point de départ de la grille est choisi au hasard, l'approche est dite aléatoire systématique. La grille peut aussi être établie selon les obstacles présents sur le site ou également en fonction d'une dimension prédéterminée des cellules. Le positionnement des stations d'échantillonnage pourrait aussi être situé à l'intersection des mailles de la grille (tel que montré à la figure 1.1a) ou au centre des polygones (ou cellules) formés par la grille. Dans le guide de caractérisation du MDDELCC (MENV, 2003), on mentionne que, basé sur les expériences passées pour les sols, le choix pour la dimension des polygones est habituellement de 15 à 25 m de côté. Dans la pratique québécoise actuelle, le choix de 25 m de côté pour la dimension des polygones est fortement répandu (ce qui correspond à une surface tributaire de l'ordre de 625 m² par station d'échantillonnage) et sert notamment de valeur comparative de référence concernant l'évaluation actuelle de l'exhaustivité d'une caractérisation.

L'approche d'échantillonnage est dite aléatoire simple lorsque la localisation des stations est purement aléatoire, c'est-à-dire sans aucune grille. Elle est rarement employée du fait qu'elle nécessite des outils informatiques particuliers et ne permet pas d'obtenir une couverture spatiale uniforme. Toutefois, elle permet d'obtenir un ensemble de données parfaitement aléatoire pour un traitement statistique ultérieur.

L'approche d'échantillonnage stratifié se distingue des autres approches par le découpage du terrain en secteurs (ou strates). À l'intérieur de chacun des secteurs prédéterminés, différentes approches peuvent être réalisées et combinées. Le cas présenté à la figure 1.1c est celui d'un échantillonnage par une stratification en trois secteurs, chacun des secteurs étant échantillonné par une approche aléatoire simple. On parle alors d'une approche d'échantillonnage aléatoire stratifié. La séparation en secteurs est possible lorsque, par exemple, la caractérisation préliminaire de phase I a souligné une diversification des activités antérieures ayant eu lieu sur le terrain ou également une différenciation des propriétés

géologiques présentes. Chacun des secteurs pourrait présenter ainsi une population statistique distincte qui pourrait faire l'objet d'un traitement statistique distinct.

L'approche d'échantillonnage est dite ciblée lorsque les stations sont localisées dans des zones où la contamination est soupçonnée. Ces zones reposent sur la revue de l'information existante et l'historique du terrain qui ont été effectués lors la caractérisation préliminaire de phase I. Le choix de ces zones est ainsi basé sur le jugement et de manière générale, fait ressortir les zones les plus contaminées du terrain. De ce fait, il est donc impossible, par cette approche, de mener vers un traitement statistique des données dont les résultats seront applicables à l'ensemble du terrain (par exemple en vue d'obtenir la concentration moyenne du terrain).

1.2.1.2 Localisation en coupe des points de prélèvement

Une fois que la localisation en plan des stations d'échantillonnage est accomplie, il est alors possible de localiser en coupe les points de prélèvement, c'est-à-dire les endroits à échantillonner verticalement au droit d'une même station. De manière générale, au moins un point de prélèvement doit être réalisé à chaque unité stratigraphique rencontrée, à chaque horizon dont la contamination est perceptible et par maximum 0,5 m de profondeur (MENV, 2003). Chaque unité stratigraphique correspond à un matériau distinct, soit d'origine naturelle, soit d'origine anthropique.

La figure 1.2 présente une schématisation de la localisation en coupe des points de prélèvements pour une même station d'échantillonnage. À partir de ce profil vertical, trois unités stratigraphiques ont été prédéterminées. Pour les unités 1 et 3, un seul point de prélèvement a été effectué pour chacune d'elles en raison, par exemple, d'une épaisseur d'unité inférieure à 0,5 m. Par contre, pour l'unité 2, deux points de prélèvement distincts ont été déterminés.

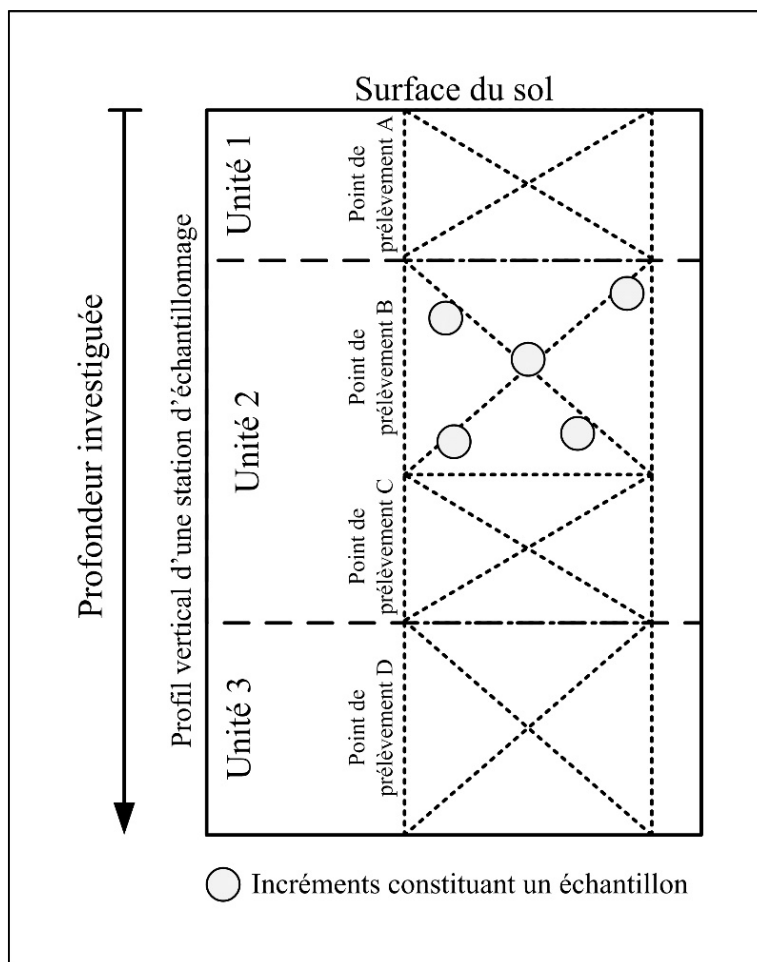


Figure 1.2 Localisation en coupe des points de prélèvements à partir d'un profil vertical

1.2.1.3 Prélèvement d'échantillons

À la suite de la localisation en coupe des points de prélèvement, on peut procéder au prélèvement d'échantillons de terrain ou également appelés « échantillons primaires ». Chaque échantillon primaire provient d'un même point de prélèvement et peut être constitué d'un seul ou de plusieurs incréments (ou petites portions de sol). Par exemple, l'échantillon prélevé au point de prélèvement B présenté à la figure 1.2 est constitué de 5 incréments (chaque incrément est représenté par un cercle). L'échantillon primaire est ensuite transféré dans un contenant approprié pour être conservé et transporté au laboratoire d'analyse dans les

délais spécifiques aux contaminants d'intérêt. Dans la pratique actuelle, la masse de l'échantillon primaire prélevé à chaque point de prélèvement est limitée par la taille du contenant utilisé. En général, cette masse est de l'ordre de 300 grammes de sol à l'état humide lorsque ledit échantillon est destiné à des analyses environnementales. Par ailleurs, l'échantillon est généralement prélevé par grappillage, ce qui sera discuté plus en détail à la section 1.4.3.

1.2.2 Interprétation et prise de décision

L'interprétation et la prise de décision reposent principalement sur les résultats obtenus en laboratoire analytique de même que la stratigraphie observée sur le terrain. Les résultats analytiques sont comparés à des valeurs-seuils légalement reconnues pour en déterminer le niveau de contamination. Au Québec, une grille de valeurs-seuils appelée « Grille de critères génériques » a été développée par le MDDELCC pour la gestion des sols contaminés et est présentée dans la *Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés* (MEF, 1998). Ces valeurs-seuils, exprimées en concentrations massiques (p. ex. mg/kg) et déterminées en fonction des risques potentiels à la fois pour la santé publique et pour l'environnement, sont divisées en trois niveaux de contamination appelés niveaux A, B et C.

D'ordre général, le niveau maximal acceptable de contamination pour un terrain donné est fonction de la vocation de celui-ci. Le niveau A fixe les limites maximales de quantification à atteindre au laboratoire analytique pour les contaminants organiques et, pour la contamination inorganique, les teneurs de fond de différentes substances (ou contaminants) naturellement présents dans le sol telles que les métaux. Ces teneurs de fond varient selon le contexte géologique et sont spécifiques à chacune des cinq provinces géologiques du Québec. En fait, le niveau A correspond aux valeurs limites pour que le sol soit considéré « propre » et ainsi soit sans restriction d'usage. Le niveau B comprend les valeurs-seuils ou concentrations maximales des contaminants pouvant être présents dans le sol d'un terrain à vocation résidentielle, récréative et institutionnelle. Le niveau C correspond aux valeurs maximales pour un terrain à vocation commerciale et industrielle.

Les valeurs-seuils des niveaux B et C sont actuellement intégrées respectivement dans les annexes I et II du *Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains* (Publications du Québec, 2015b). Un deuxième règlement, le *Règlement sur l'enfouissement des sols contaminés* (Publications du Québec, 2015a) est également employé pour la gestion des sols contaminés. Les valeurs-seuils spécifiées dans l'annexe I de ce dernier règlement limite la contamination des sols excavés pouvant être enfouis et a pour but de favoriser la décontamination avant l'enfouissement. Par simplification, ce niveau est souvent appelé niveau D dans la pratique. Cette appellation sera aussi utilisée dans le présent document.

Afin de prendre une décision éclairée en ce qui concerne les interventions requises (type de traitement, etc.) et l'évaluation des coûts des travaux de réhabilitation d'un site urbain contaminé, l'estimation des volumes de sols contaminés est indispensable. Les volumes de sols sont calculés pour chaque plage de contamination en fonction des valeurs-seuils respectives aux niveaux A à D. Lorsque des résultats analytiques sont disponibles pour différents contaminants, la plage de contamination attribuée spécifiquement à un point de prélèvement (ou échantillon) est déterminée en tenant compte du principe du contaminant le plus déclassant (en d'autres termes, la plage maximale de contamination est retenue par échantillon). Les cinq plages de contamination sont :

- plage <A pour le sol dont la concentration du contaminant le plus déclassant est inférieure à la valeur-seuil du niveau A;
- plage AB pour le sol dont la concentration du contaminant le plus déclassant se situe entre les niveaux A et B;
- plage BC pour le sol dont la concentration du contaminant le plus déclassant se situe entre les niveaux B et C;
- plage CD pour le sol dont la concentration du contaminant le plus déclassant se situe entre les niveaux C et D;
- plage >D pour le sol dont la concentration d'au moins un contaminant est supérieure au niveau D.

1.2.3 Spatialisation des résultats analytiques

Puisque chacun des résultats analytiques est attribué à un point spécifique de prélèvement (ou échantillon), il est nécessaire d'avoir recours à une méthode de spatialisation de l'information obtenue afin d'estimer les volumes de sols contaminés pour chaque plage de contamination. À cet effet, dans la pratique actuelle, l'estimation des volumes de sols est basée généralement sur une approche géométrique par polygones. Cette approche consiste à étendre les résultats des échantillons analysés à des zones polygonales. Le principe de base est d'attribuer à un point donné la valeur du point observé le plus proche. Pour fins de simplification, les polygones sont très souvent considérés de forme régulière (par exemple des carrés) comparativement aux polygones irréguliers de Thiessen. Par cette approche, le résultat analytique est considéré constant sur toute la zone couverte par un même polygone, ce qui sous-entend l'hypothèse d'une contamination uniforme à l'intérieur de celui-ci. Cette approche est représentée à la figure 1.3 pour le cas d'une séparation du terrain en polygones réguliers de forme carrée.

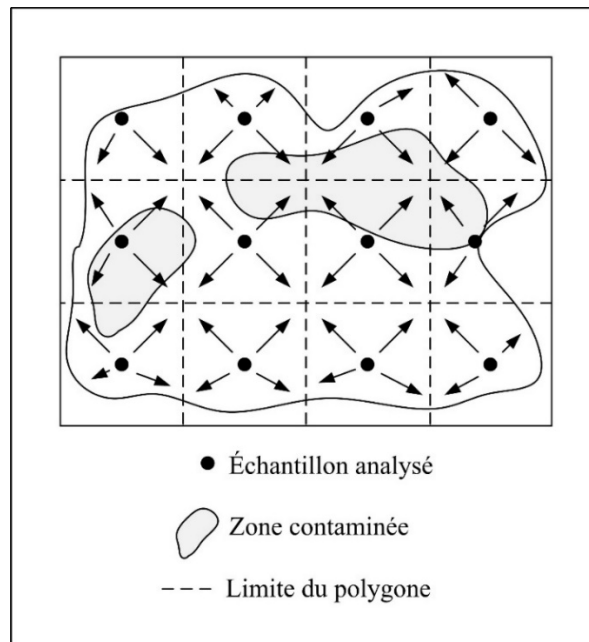


Figure 1.3 Approche géométrique par polygones

1.3 Procédures de caractérisation de seconde génération

Dans le but d'améliorer les procédures existantes, de nouvelles approches multidisciplinaires de caractérisation dites « de seconde génération » ont émergé vers la fin des années 1990 et le début des années 2000. On retrouve notamment l'*Expedited Site Characterization* du *Department of Energy* des États-Unis (ASTM, 2010; USDOE, 1998), le *Technical Project Planning* de l'*Army Corps of Engineers* des États-Unis (USACE, 1998) et *Triad Approach* de l'*Environmental Protection Agency* des États-Unis (ITRC, 2003). La *Triad Approach*, ou approche triade, représente la dernière version des approches de seconde génération et intègre les divers concepts innovateurs de ses prédécesseurs.

1.3.1 Approche triade

L'approche triade est une initiative scientifique et technique élaborée par l'USEPA (Crumbling, 2004; ITCR, 2003; 2007; USEPA, 2008; 2010; Woll et al., 2003). Cette approche s'articule autour d'un élément clé : la gestion de l'incertitude. Tel que présenté à la figure 1.4, l'approche triade intègre trois composantes primaires étroitement liées et interdépendantes : 1) une planification systématique du projet, 2) une stratégie dynamique de travail et 3) des techniques de mesure en temps réel.

Dans le contexte de la réhabilitation des sites contaminés, la planification systématique du projet repose sur une définition claire et précise des objectifs généraux à atteindre et du niveau de confiance nécessaire pour supporter la prise de décision par les principaux intervenants. Dès lors, la notion d'incertitude doit être prise en compte afin de définir le niveau de confiance souhaité. Par la suite, ces objectifs généraux sont transposés en objectifs techniques réalisables par une équipe multidisciplinaire. Celle-ci effectue notamment une revue de l'information disponible du terrain et détermine ce qui doit être connu pour répondre aux objectifs généraux. À cet effet, le développement d'un modèle conceptuel du site (MCS) est inévitable. De façon globale, le MCS est une représentation, soit graphique, schématique ou écrite, qui conceptualise le site contaminé à caractériser.

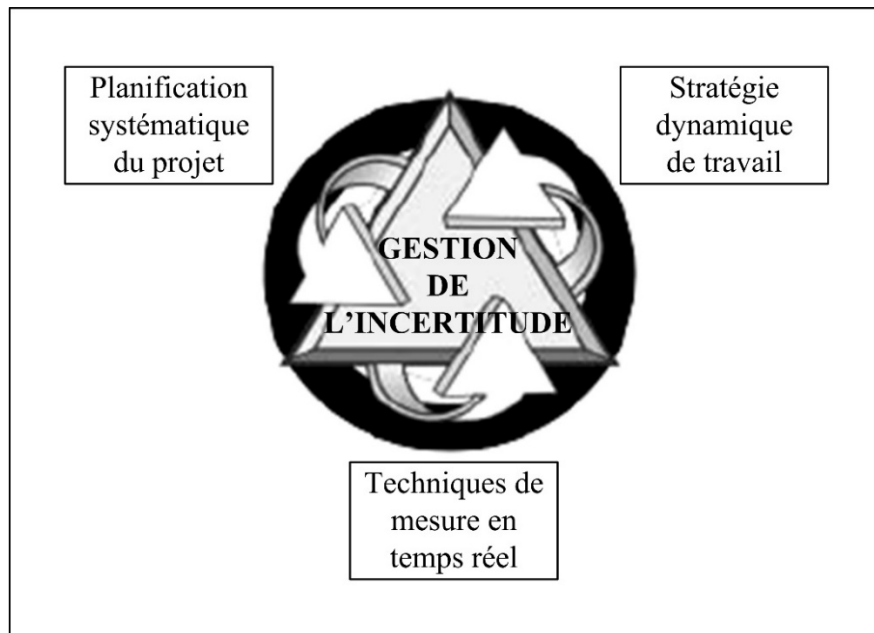


Figure 1.4 Composantes primaires de l'approche triade
Adaptée de Crumbling, Griffith et Powell (2003)

La stratégie dynamique de travail est l'élément qui permet de mener à terme le projet de manière plus rapide tout en limitant les coûts. On estime que le recours à une stratégie dynamique de travail pourrait sauver jusqu'à près de 50% des coûts globaux sur l'ensemble d'un projet (Crumbling, Griffith et Powell, 2003). Le caractère dynamique de cette composante est assuré par l'évolution continue et en temps réel du MCS, c'est-à-dire au fur et à mesure que de nouvelles données sont recueillies.

Les techniques de mesure en temps réel englobent à la fois des techniques analytiques de terrain et d'auscultation de terrain qui permettent de réaliser des mesures *in situ* et des outils informatiques permettant d'intégrer l'ensemble des données recueillies sur un projet spécifique. Les outils informatiques ont l'avantage, entre autres, de permettre une représentation visuelle des données et du MCS, ce qui améliore grandement la communication entre les divers intervenants. Ces outils et techniques représentent ainsi la base du caractère dynamique de la planification des projets de caractérisation et de réhabilitation des sites contaminés.

1.3.2 Techniques analytiques de terrain

L'utilisation de techniques analytiques de terrain est fortement préconisée par les approches de caractérisation de seconde génération. Ces techniques permettent de mesurer directement sur site, de manière rapide et à moindre coût, la concentration de certains contaminants d'intérêt (Taylor, Ramsey et Potts, 2004). Ces techniques comprennent, entre autres, les kits d'analyse de type immuno-enzymatique, la méthode colorimétrique, la fluorescence par induction laser, la fluorescence par rayons X et la spectroscopie laser-plasma. On retrouve quelques applications de ces techniques depuis les années 1990 dans le domaine de la caractérisation des sites contaminés (Mäkinen et al., 2006; McComb et al., 2014; McDonald, 2011; Taylor, Ramsey et Potts, 2004; Wisbrun, Niessner et Schroder, 1993; Woll et al., 2003).

La figure 1.5 schématise l'apport des techniques analytiques de terrain lors de la caractérisation des terrains de même que le gain possible en diminution de l'incertitude totale sur les données produites. Par caractérisation conventionnelle, les échantillons prélevés sur le terrain sont transportés et analysés en laboratoire traditionnel, ce qui représente d'importants coûts en analyse de même que des délais considérables. De ce fait, le nombre de stations d'échantillonnage (représentées à la figure 1.5a par les symboles \$ signifiant des coûts élevés d'analyse) est limité. Par contre, de par leur coût d'analyse moins élevé, l'utilisation de techniques analytiques de terrain permet d'accroître le nombre de mesures analytiques et de stations d'échantillonnage (représentées à la figure 1.5b par les symboles ¢ signifiant de faibles coûts d'analyse) pour un même budget analytique. Cette plus grande densité d'échantillonnage entraîne impérativement une meilleure couverture spatiale et par conséquent, une meilleure délimitation de la contamination de même qu'une réduction des risques de non-détection d'une zone contaminée. Tel que schématisé à la figure 1.5, l'une des tâches grisâtres, représentant des zones contaminées (ou *hot spots* en anglais), n'est pas détectée par l'approche conventionnelle (symboles \$ à la figure 1.5a) comparativement à l'approche de seconde génération (symboles ¢ à la figure 1.5b).

Les données provenant d'analyses en laboratoire sont généralement considérées comme étant de plus grande qualité que les analyses produites sur le terrain puisque les méthodes en laboratoire sont souvent plus précises et possèdent des limites de détection plus faibles. Toutefois, dans le cadre d'une gestion globale de l'incertitude et de la qualité des données, l'incertitude liée à l'échantillonnage doit être prise en compte. L'incertitude totale pour chaque procédure de caractérisation est schématisée par la somme de deux vecteurs à la figure 1.5 : un vecteur horizontal représentant l'incertitude liée à l'échantillonnage et un vecteur vertical représentant l'incertitude analytique. En raison d'une meilleure couverture spatiale, les nouvelles approches intégrant l'utilisation de techniques analytiques de terrain présentent une incertitude réduite liée à l'échantillonnage (voir schématisation de l'incertitude totale à la figure 1.5c). Il est à noter que, dans le présent exemple, l'incertitude liée à l'échantillonnage englobe non seulement les erreurs liées au prélèvement des échantillons primaires mais également celles liées au positionnement des stations. Ainsi, même en présence d'une incertitude analytique des analyses effectuées sur site plus grande que pour les analyses effectuées en laboratoire traditionnel, les nouvelles approches de caractérisation (c'est-à-dire de seconde génération) peuvent résulter en une incertitude totale réduite (voir figure 1.5c) par rapport aux procédures conventionnelles (Crumbling et al., 2001).

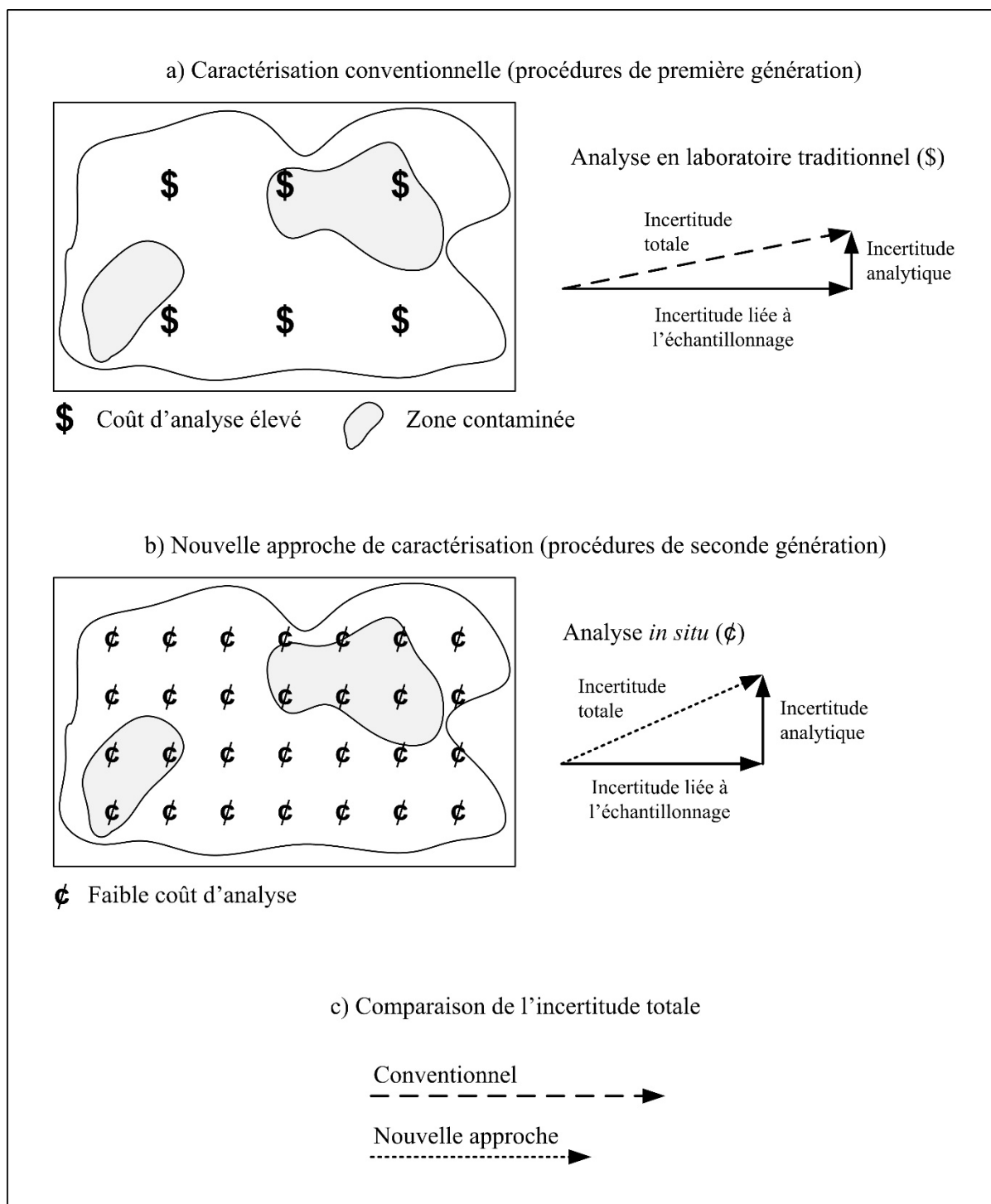


Figure 1.5 Impact des techniques analytiques de terrain sur l'incertitude globale
Adaptée de Crumbling *et al.* (2001)

1.3.3 Qualité des données recueillies lors de la caractérisation de sites contaminés

Le concept de la qualité, ou représentativité, des données dans le domaine des sites contaminés est fortement mis de l'avant avec les procédures de caractérisation de seconde génération telle que l'approche triade. Dans la pratique actuelle, qui repose sur des procédures de caractérisation dites de « première génération » ou conventionnelle, la qualité des données est très souvent perçue comme étant égale à la qualité analytique, c'est-à-dire celle mesurée en laboratoire (Crumbling, 2004). Toutefois, il a été démontré par de nombreux auteurs que cette perception généralisée est fausse. Ces études ont démontré, d'ordre général, que plus de 90% de la variabilité des données provient des erreurs d'échantillonnage et moins de 10% de la variabilité découle des erreurs induites lors de l'analyse chimique (Crumbling, Griffith et Powell, 2003; Gustavsson, Luthbom et Lagerkvist, 2006; Mason, 1992). En conséquence, les procédures de caractérisation de seconde génération prône l'évaluation et la connaissance de la qualité des données et ce, à toutes les étapes de la production des données, soit du terrain lors du prélèvement des échantillons primaires jusqu'en laboratoire lors de la mesure analytique (en passant par les étapes intermédiaires de sous-échantillonnage).

Dans le processus conventionnel de l'analyse environnementale, la quantité de sol soumise à l'extraction chimique afin d'évaluer sa concentration est très minime par rapport à la parcelle du site que ce sol doit représenter. Par exemple, pour l'analyse des métaux, moins de 1 gramme de sol est prélevé dans les échantillons primaires reçus en laboratoire et est réellement utilisé lors de la digestion acide. Par conséquent, le résultat analytique obtenu à partir de cette très faible quantité de sol est responsable de la décision prise sur un volume de sol beaucoup plus grand que celui réellement analysé. Dans le contexte d'une réhabilitation d'un site contaminé basée sur une grille de 25 mètres par 25 mètres (ce qui est couramment utilisée), le rapport massique entre la parcelle du terrain (ou polygone) et la masse de sol analysé est de l'ordre de 10^9 . En d'autres termes, l'analyse chimique est effectuée sur une fraction massique correspondante à environ un milliardième de la parcelle (ou polygone) du terrain qu'elle représente. Il est donc attendu que les résultats analytiques comportent un

certain niveau de disparité avec la concentration réelle du matériau échantillonné, en l'occurrence le sol. Ces disparités sont d'autant plus accentuées en présence de milieux anthropiques fortement hétérogènes tels que les remblais hétérogènes urbains. Ces disparités mènent donc impérativement à un certain degré d'incertitude.

1.4 Incertitude

L'incertitude, au sens général, est un concept évoluant autour du doute. Ainsi, l'incertitude est liée à la présence d'un doute sur la validité d'un résultat obtenu à la suite d'un mesurage et découle de notre connaissance limitée concernant cette valeur spécifique. Le groupe de travail *Joint Committee for Guide in Metrology* (JCGM), composé de huit organisations internationales telle l'*International Organization for Standardization* (ISO), a rédigé un guide métrologique portant sur l'expression de l'incertitude de mesure (JCGM, 2008). Dans ce guide, l'incertitude est défini comme un :

« Paramètre, associé au résultat d'un mesurage, qui caractérise la dispersion des valeurs qui pourraient raisonnablement être attribuées au mesurande. [...] Le paramètre peut être, par exemple, un écart-type (ou un multiple de celui-ci) ou la demi-largeur d'un intervalle de niveau de confiance déterminé. »
(JCGM, 2008, p. 2)

Le mesurande, quant à lui, se définit comme étant la « grandeur particulière soumise à un mesurage » (JCGM, 2008, p. 36) telle que la concentration d'un analyte, c'est-à-dire d'un contaminant d'intérêt. La valeur « vraie » ou réelle attribuée au mesurande est, par nature, toujours inconnue. On ne peut que l'estimer. Ainsi, le résultat d'un mesurage n'est pas une valeur unique telle que trop souvent considérée. En réalité, les résultats d'un mesurage sont des variables aléatoires pour lesquelles on tente de résumer la distribution sous forme de deux paramètres : 1) un paramètre de tendance centrale représentant le résultat du mesurage et 2) un paramètre de dispersion représentant l'incertitude.

Il en est ainsi également dans le contexte de la caractérisation des sites contaminés : nous ne pouvons déterminer avec certitude la quantité de sol à gérer pour un site ni même la concentration réelle d'un contaminant spécifique présent dans le sol. Nous pouvons au mieux les estimer par des valeurs probables. Conséquemment, une incertitude est rattachée à ces estimations et doit être indiquée afin de fournir une estimation complète de ces valeurs probables.

On parle d'« incertitude élargie » lorsque l'incertitude est multipliée par un facteur d'élargissement afin que l'on puisse s'attendre à ce que l'intervalle de confiance autour du résultat comprenne une fraction élevée de la distribution des valeurs qui pourraient être attribuées raisonnablement au mesurande (JCGM, 2008). Par exemple, on pourrait utiliser le score Z associé à un niveau de confiance souhaité comme facteur d'élargissement si on suppose *a priori* que les valeurs possibles suivent une loi normale et que le nombre effectif de degrés de liberté est significativement grand.

Dans le domaine de la spatialisation des données (tel que la caractérisation des sites contaminés), on peut aussi qualifier l'incertitude de « locale » versus « globale ». L'incertitude est considérée locale lorsque celle-ci fait référence à un emplacement spécifique d'un modèle en trois dimensions tandis qu'elle est considérée globale (ou spatiale) lorsqu'elle tient compte, soit simultanément, soit séquentiellement, de valeurs attribuées à différents emplacements (Goovaerts, 2001; Goovaerts, 2005).

Les sources d'incertitude sont nombreuses et variées selon le domaine de mesurage. Dans le cas de la caractérisation et de la réhabilitation des sites contaminés, l'hétérogénéité du sol s'avère être le facteur prédominant qui contribue à l'incertitude globale (Ramsey et Ellison, 2007).

1.4.1 Hétérogénéité

L'hétérogénéité est une notion faisant opposition à l'homogénéité. Un matériau est homogène lorsque toutes les unités d'un ensemble, ou d'un lot, sont strictement identiques entre elles. L'homogénéité est donc le zéro de l'hétérogénéité, un zéro qui ne peut être atteint en pratique. Gy (1996) mentionne que « l'homogénéité est un concept mathématique abstrait sans existence réelle dans le monde de la matière ». Le sol est par définition un matériau hétérogène, étant composé de trois principales phases : phase solide, phase liquide et phase gazeuse. L'hypothèse d'homogénéité est de ce fait impossible dans le contexte des sites contaminés et ce, autant à l'échelle du terrain qu'à l'échelle de l'échantillon. Pour les matières morcelées (p. ex. des matériaux granulaires, le sol, etc.), Gy (1996) distingue l'hétérogénéité sous deux formes : l'hétérogénéité de constitution (HC) et l'hétérogénéité de distribution (HD).

L'hétérogénéité de constitution fait référence aux différences des propriétés physico-chimiques des éléments constituant le lot (échelle microscopique). Ces différences, ou variations, des propriétés physiques et chimiques des éléments constitutifs sont dues notamment aux facteurs suivants :

- forme des particules,
- taille des particules,
- nombre de particules de chaque type,
- masse des particules et leur densité,
- composition chimique des particules,
- composition chimique des analytes,
- concentrations en analyte associées à chaque particule,
- composition interstitielle (p. ex. la présence d'une phase liquide).

L'hétérogénéité de constitution est également définie comme la propriété structurale primaire d'un lot (volume quelconque d'un matériau). De son côté, l'hétérogénéité de distribution se rapporte à la distribution des éléments au sein du matériau (échelle macroscopique comparativement à l'échelle microscopique de l'hétérogénéité de constitution). Trois facteurs

sont responsables de l'hétérogénéité de distribution : 1) l'hétérogénéité de constitution; 2) l'arrangement spatiale des particules; 3) la forme du lot.

L'hétérogénéité de distribution est une conséquence directe de l'hétérogénéité de constitution. Elle est toujours plus petite ou égale à l'hétérogénéité de constitution (Pitard, 1993). L'arrangement des particules et la forme du lot sont des facteurs importants puisque l'hétérogénéité de distribution est fortement influencée par les forces gravitationnelles omniprésentes dans notre environnement. Ces forces gravitationnelles induisent une anisotropie dans le lot sous forme de ségrégation. Ainsi, plus les éléments constitutifs du lot seront différents (p. ex. la densité, la taille, la forme, etc.), plus forte seront l'hétérogénéité de constitution et la ségrégation et par conséquent, plus forte sera l'hétérogénéité de distribution.

1.4.2 Qualification d'un échantillonnage : la représentativité

La qualité d'un résultat analytique doit être jugée en fonction des erreurs relatives engendrées lors du processus global, c'est-à-dire du prélèvement de l'échantillon primaire sur le terrain jusqu'à son analyse en laboratoire. On appelle « erreur globale d'estimation » (EGE) l'erreur relative ainsi produite et elle est mesurée par la relation suivante :

$$EGE = \frac{a_R - a_L}{a_L} \quad (1.1)$$

où a_R est le résultat de l'analyse chimique, en l'occurrence la concentration massique de l'analyte a (ou contaminant a), et a_L est la concentration massique réelle de ce même analyte dans le lot L (ou matériau à échantillonner). L'erreur globale d'estimation est la somme de deux erreurs distinctes : l'erreur totale d'échantillonnage (ETE) et l'erreur totale analytique (ETA). L'erreur totale d'échantillonnage est l'erreur relative produite par toutes les étapes d'échantillonnage et de sous-échantillonnage (de l'échantillonnage primaire sur le terrain jusqu'à l'échantillonnage final en laboratoire). L'erreur totale analytique est la partie de l'EGE qui correspond aux erreurs engendrées lors de l'extraction des analytes d'intérêt en laboratoire et lors de la mesure analytique.

La qualité d'une procédure d'échantillonnage peut être déterminée par le prélèvement répété, sur un même matériau, de plusieurs échantillons obtenus de façon indépendante puis soumis à l'analyse. En connaissant la concentration réelle du matériau échantillonné, il est alors possible de calculer EGE pour chaque échantillon prélevé et ainsi d'obtenir la moyenne de ces erreurs relatives (ou erreur systématique), identifiée par $m(EGE)$, de même que l'écart-type de ces erreurs relatives (ou erreur aléatoire), identifié par $s(EGE)$. La figure 1.6 présente le concept de l'erreur systématique et de l'erreur aléatoire à l'aide d'une courbe de densité de probabilité déterminée selon des mesures répétées.

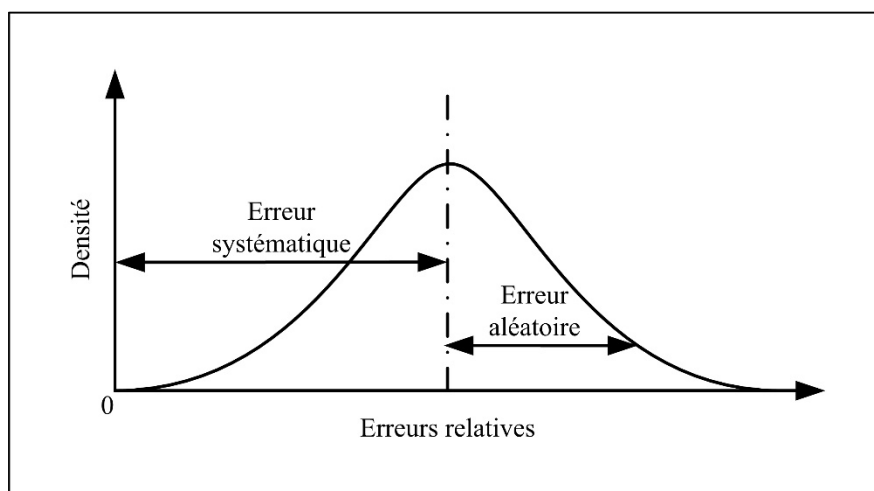


Figure 1.6 Schématisation de l'erreur systématique et de l'erreur aléatoire à l'aide d'une courbe de densité de probabilité

Un échantillonnage est juste, c'est-à-dire sans biais, lorsque la moyenne des erreurs relatives est strictement nulle. Toutefois, étant très rarement le cas en pratique, l'échantillonnage est considéré juste lorsque la moyenne des erreurs relatives (ou le carré de cette valeur moyenne) sera inférieure à une valeur-seuil fixée. Dans le même ordre d'idée, l'échantillonnage sera dit reproductible lorsque la variance des erreurs relatives sera inférieure à une valeur-seuil fixée. La représentativité d'un échantillonnage sera égale à la somme de deux composantes : 1) le carré de la moyenne des erreurs relatives (c'est-à-dire la justesse) et 2) la variance des erreurs

relatives (c'est-à-dire la reproductibilité). Il est donc possible de décrire la représentativité par la relation suivante :

$$r^2(EGE) = m^2(EGE) + s^2(EGE) \quad (1.2)$$

où $r^2(EGE)$ est la représentativité d'un échantillonnage, $m^2(EGE)$ est le carré de la moyenne des erreurs relatives et $s^2(EGE)$ est la variance des erreurs relatives. Afin qu'un échantillon soit considéré représentatif, il devra ainsi résulter d'un échantillonnage pour lequel la valeur de représentativité sera inférieure à une valeur-seuil fixée.

On peut imaginer les concepts de justesse et reproductibilité à l'aide d'une cible tel que montré à la figure 1.7 et de vecteurs en deux dimensions. Le centre de la cible représente la valeur vraie. Chaque point représente une valeur possible obtenue, de façon indépendante, à partir d'une même procédure d'échantillonnage. Plus la procédure d'échantillonnage sera reproductible, plus les points seront proches les uns des autres, c'est-à-dire plus la valeur de $s^2(EGE)$ sera faible (voir figure 1.7A et B). À l'inverse, une procédure qui sera peu reproductible générera des valeurs peu semblables entre elles (voir figure 1.7C et D). La justesse, de son côté, peut être expliquée par le centre géométrique formé par l'ensemble de points ou valeurs possibles. Si le centre géométrique coïncide avec le centre de la cible, la procédure sera juste et sera caractérisée par une faible valeur de $m^2(EGE)$ (voir figure 1.7B et D). Inversement, si le centre géométrique est décentré par rapport à la cible, la procédure sera ainsi biaisée (voir figure 1.7A et C). La procédure imagée par la cible B est donc la plus représentative.

Selon Gy (2004a), seul un échantillonnage dit « probabiliste correct » peut mener à l'obtention d'un échantillon représentatif. L'échantillonnage est dit « probabiliste correct » lorsque tous les éléments constitutifs du lot possèdent une probabilité égale et non-nulle d'être sélectionnés pour faire partie intégrante d'un échantillon. Toujours selon Gy (2004a), le résultat d'un échantillonnage non probabiliste ne peut être considéré comme un « échantillon » mais plutôt comme un « spécimen » du lot.

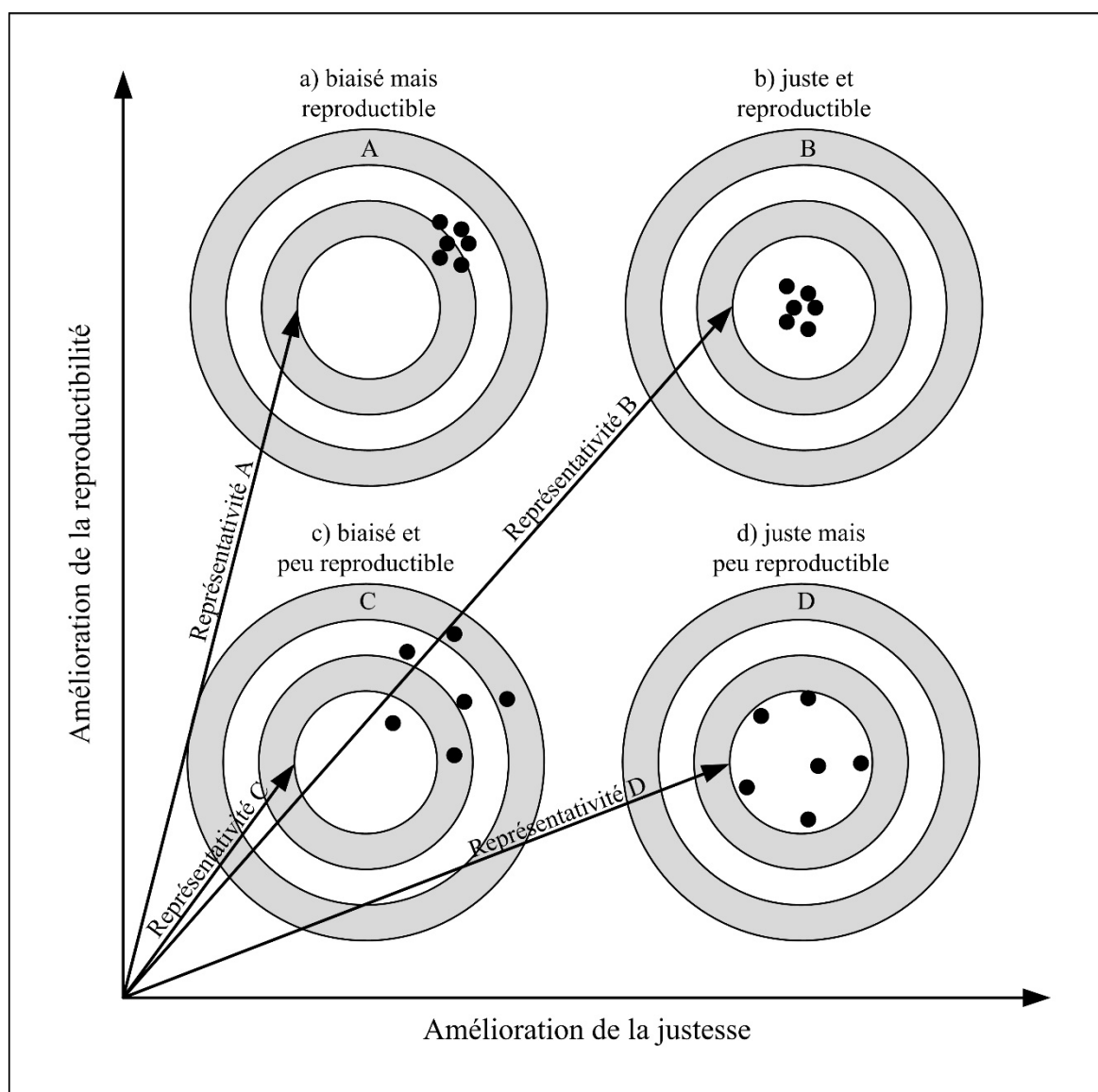


Figure 1.7 Représentation schématique de la représentativité
Adaptée de Gy (1996)

1.4.3 Échantillonnage par grappillage

Le grappillage consiste à prélever la fraction la plus accessible d'un matériau, par exemple à la surface exposée d'une pile d'un matériau granulaire ou encore à la surface exposée d'un camion benne. Le grappillage est qualifié de non correct parce qu'il est généralement non

probabiliste (c'est-à-dire que certains éléments constitutifs ont une probabilité nulle d'être sélectionnés) ou parfois probabiliste mais incorrect (c'est-à-dire que tous les éléments constitutifs n'ont pas la même probabilité d'être sélectionnés). Dans le cas, par exemple, d'un matériau mis en pile, un échantillon prélevé seulement en surface de la pile ne pourra représenter, c'est-à-dire être représentatif, du matériau situé au centre de cette pile. Les éléments constitutifs du centre de la pile ont donc une probabilité nulle d'être sélectionnés. En outre, la localisation des incréments constituant le prélèvement grappillé fait intervenir en grande partie le jugement de la personne qui prélève, ce qui rend l'échantillonnage très subjectif et peut ainsi mener à des erreurs relatives considérables. Le grappillage est, par définition, toujours biaisé, et peut engendrer des erreurs considérables et ruineuses à long terme (Gy, 1996). À travers plus de 45 années d'expérience en échantillonnage, Gy (1996) fait mention d'erreurs relatives mesurées jusqu'à 1000% pour le grappillage, qui est impérativement un échantillonnage à proscrire. De surcroît, selon plusieurs autres auteurs, le grappillage devrait être évité dans tous les cas en raison de sa très faible représentativité (Dubé et al., 2015; Dubé et al., 2014; Gerlach et al., 2002; Petersen, Dahl et Esbensen, 2004; Petersen, Minkinen et Esbensen, 2005). Malheureusement, le grappillage est très répandu dans la pratique, notamment pour l'échantillonnage des sols contaminés. Pour cette raison, l'échantillonnage par grappillage est également appelé ici « échantillonnage conventionnel ».

1.5 Lacunes des procédures actuelles

Les procédures de caractérisation de seconde génération telles que l'approche triade présentent un ensemble conceptuel exposant des idées et des tendances novatrices dans le domaine des sites contaminés. Toutefois, elles sont encore très peu répandues dans la pratique actuelle en raison notamment du manque de guides intégrateurs et de protocoles détaillés (Crumbling, Griffith et Powell, 2003). En surcroît, ces nouvelles approches de caractérisation sont très peu documentées par de réelles études de cas.

Malgré l'existence de ces procédures de seconde génération (et également des procédures conventionnelles) qui dictent, de façon globale, les règles de conduite lors de la

caractérisation des sites contaminés, plusieurs étapes du processus demeurent grandement influencées par le jugement des intervenants et des décisionnaires. Ce jugement, différent d'une personne à une autre, entraîne donc une disparité dans le niveau de qualité des études de caractérisation et de réhabilitation des sites contaminés. En outre, le contrôle quasi inexistant de l'incertitude sur ces études dans la pratique actuelle engendre des risques environnementaux, professionnels et financiers parfois considérables voire même catastrophiques. Actuellement, bien des praticiens et des législateurs reconnaissent les limites des procédures actuelles, en particulier leur application à des sites urbains contaminés empreints d'une forte hétérogénéité tels les remblais hétérogènes urbains.

Tout particulièrement, il n'existe pas de balises bien définies concernant la localisation des stations d'échantillonnage sur un terrain à part le fait qu'elle soit basée sur un historique très souvent fragmenté de ce terrain. De plus, la façon de prélever les échantillons primaires au droit de chaque point de prélèvement est encore mal encadrée et trop souvent basée uniquement sur le jugement du préleveur. Il n'existe pas de règles établies sur la masse des échantillons primaires à prélever, actuellement limitée à la taille du contenant utilisé et ne tenant pas compte de l'hétérogénéité du matériau à échantillonner. Par ailleurs, la représentativité des résultats analytiques est souvent réduite à la simple variabilité analytique alors qu'en réalité, la mesure est influencée par toutes les étapes du processus d'échantillonnage, c'est-à-dire de l'échantillon primaire jusqu'à l'analyse chimique, en passant des étapes intermédiaires de sous-échantillonnage. La prise de décision, basée globalement uniquement sur les résultats analytiques, ne tient pas compte de la qualité des données recueillies et de la représentativité des échantillons. Plus encore, cette prise de décision est basée sur des données ponctuelles (échantillons prélevés au droit des stations d'échantillonnage) souvent très distantes sans aucune appréciation de ce qui se retrouve entre deux stations.

Finalement, bien que l'on reconnaisse l'existence d'une incertitude sur les études de caractérisation des sites contaminés, il n'existe pas de méthode formelle permettant de la

contrôler, c'est-à-dire de quantifier l'incertitude en premier lieu puis de la réduire en second lieu.

CHAPITRE 2

HYPOTHÈSE, OBJECTIFS ET STRATÉGIE DE RECHERCHE

La pratique actuelle dans le domaine de la caractérisation des sites urbains contaminés présente plusieurs lacunes qui ont été exposées au chapitre précédent. Ces lacunes influencent la qualité des études de caractérisation environnementale, tout particulièrement l'incertitude lors de la prise de décision. Bien que les procédures de caractérisation de seconde génération gravitent autour du contrôle de l'incertitude, aucune démarche formelle n'a été développée pour quantifier et réduire l'incertitude liée aux études de caractérisation des sites contaminés. Ainsi, en regard à cette problématique, la question scientifique qui oriente la présente recherche est :

Comment pouvons-nous contrôler, c'est-à-dire quantifier et réduire, l'incertitude globale inhérente aux études de caractérisation environnementale des sites urbains contaminés?

En réponse à cette question, l'hypothèse principale est que :

La caractérisation de l'hétérogénéité du sol, à la fois à l'échelle de l'échantillon et du terrain, permet d'assurer le contrôle de l'incertitude globale inhérente aux études de caractérisation environnementale des sites urbains contaminés.

2.1 Objectifs de la recherche

Ainsi, l'objectif premier de recherche est de développer et de formuler une approche qui permettra de contrôler l'incertitude globale associée aux études de caractérisation des sites urbains contaminés par la caractérisation de son hétérogénéité.

La stratégie de recherche reposera sur la caractérisation de l'hétérogénéité à travers trois concepts interreliés :

- 1) la géométrie physique interne,
- 2) la représentativité des échantillons,
- 3) la distribution spatiale de la contamination.

La figure 2.1 présente une schématisation des concepts du cadre idéationnel de la présente recherche afin de valider l'hypothèse posée et de rencontrer l'objectif principal.

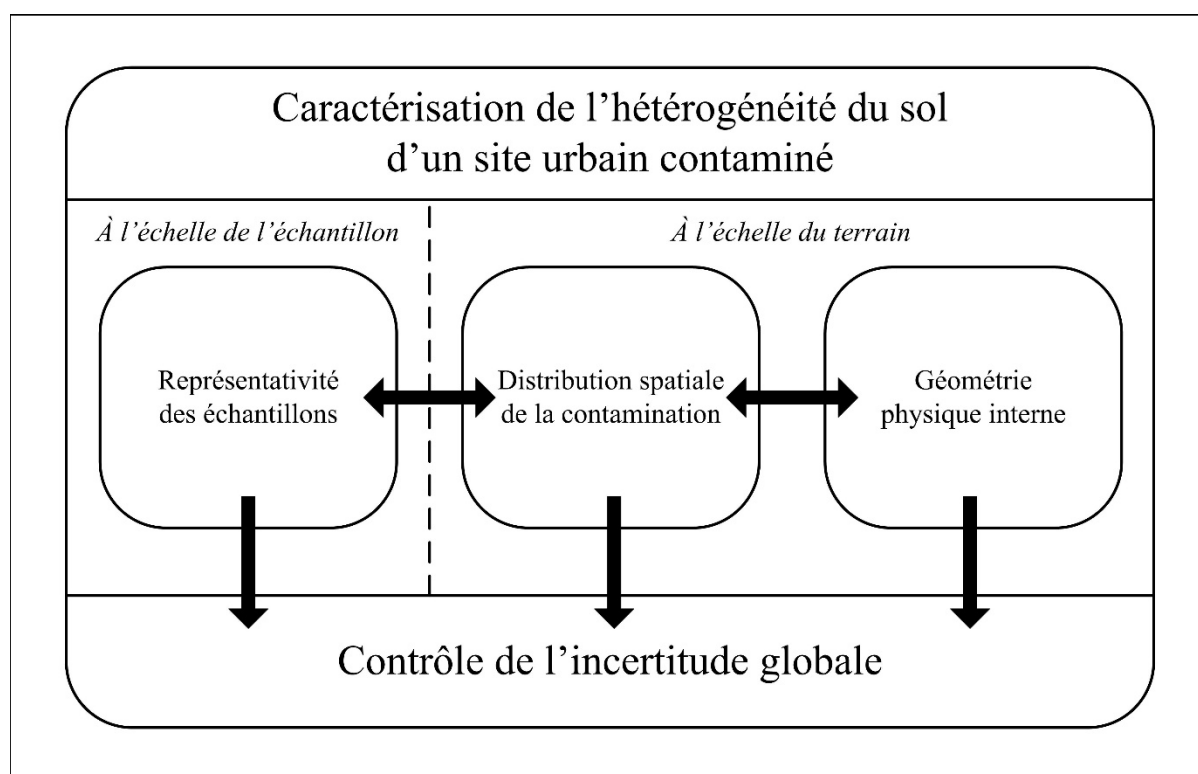


Figure 2.1 Conceptualisation du cadre idéationnel de la recherche

Le contrôle de l'incertitude globale s'effectuera à deux niveaux : 1) à l'échelle de l'échantillon et 2) à l'échelle du terrain. La caractérisation de l'hétérogénéité par une mesure de la représentativité des échantillons permettra de contrôler l'incertitude à l'échelle de l'échantillon, c'est-à-dire à un même point de prélèvement. La caractérisation de la géométrie physique interne du site permettra de contrôler l'incertitude à l'échelle du terrain par une

appréciation des propriétés physiques du sol se retrouvant entre deux stations d'échantillonnage. La caractérisation de la distribution spatiale de la contamination permettra de contrôler l'incertitude globale par une optimisation de l'emplacement des stations d'échantillonnage.

Les objectifs spécifiques à chacun des trois concepts seront :

1. Caractériser la géométrie physique interne du sol :

- décrire la géométrie physique interne d'un site urbain contaminé de façon pratiquement continue;
- comparer le gain d'une description quasi continue de l'hétérogénéité des propriétés physiques d'un site urbain contaminé par rapport à une évaluation ponctuelle.

2. Caractériser la représentativité des échantillons de sol :

- déterminer les paramètres influençant la représentativité des échantillons;
- développer une procédure d'échantillonnage qui permet d'améliorer la représentativité des échantillons de sols urbains contaminés;
- quantifier le gain en représentativité de la procédure développée par rapport à la pratique actuelle en matière d'échantillonnage environnemental des sols.

3. Caractériser la distribution spatiale de la contamination :

- évaluer la structure spatiale de la contamination d'un site urbain contaminé;
- estimer le niveau de la contamination localement sur le site en tenant compte de la structure spatiale présente;
- quantifier localement et globalement l'incertitude associée à ces estimations.

2.2 Cadre théorique sommaire et originalité de la recherche

Puisque le cadre idéationnel est divisé en trois concepts interreliés, la recherche a été également divisée en trois parties, chaque partie correspond ainsi à chacun des concepts précédemment énoncés. Chacune de ces trois parties font l'objet d'un article scientifique distinct. Ces trois articles sont présentés aux chapitres 3, 4 et 5 de la présente thèse.

Pour chacun de ces articles, une revue sommaire de littérature spécifique au sujet est présentée de même que les objectifs spécifiques, la méthodologie de la recherche, les résultats obtenus et l'interprétation de ces résultats.

Les trois sections suivantes présentent une introduction sommaire pour chacun des trois articles liés aux concepts du cadre idéationnel.

2.2.1 Géométrie physique interne

Le concept de « géométrie physique interne » fait l'objet du chapitre 3 (article 1).

Le contrôle de l'incertitude durant la caractérisation environnementale d'un site urbain contaminé débute par une caractérisation approfondie de l'hétérogénéité. Cette caractérisation approfondie pourrait être obtenue notamment par l'augmentation du nombre de stations d'échantillonnage. Toutefois, l'augmentation du nombre de sondages mène impérativement à une augmentation du budget devant être investi lors de la caractérisation, budget qui est très souvent limité par les décideurs dès le début d'un projet. De plus, même si un nombre accru de stations d'échantillonnage permettrait d'obtenir un portrait plus détaillé d'un site, le portrait ainsi obtenu demeure néanmoins déterminé ponctuellement (c.-à-d. seulement au droit de chaque station d'échantillonnage mais inconnu entre les stations). Ainsi, le recours à des méthodes d'auscultation permettant d'obtenir un portrait quasi continu est inévitable afin de caractériser l'hétérogénéité de façon approfondie.

Les méthodes géophysiques, qui soulignent les contrastes des propriétés du sol de même que les anomalies pouvant s'y retrouver (p. ex. des structures géologiques spécifiques), permettent d'obtenir un portrait géologique pratiquement continu et de manière non-destructive. Les méthodes géophysiques, développées pour explorer les zones profondes de la croûte terrestre, sont utilisées depuis plusieurs décennies pour la prospection minière et pétrolière. Depuis les années 1990, on retrouve quelques applications environnementales de ces méthodes, principalement pour la détection de réservoirs souterrains ou la délimitation de panaches de contamination. Bien que quelques rares exemples d'application des méthodes géophysiques pour la caractérisation de l'hétérogénéité d'un site contaminés existent (p. ex. Holt et al., 1998; Mundell et Byer, 2004), ceux-ci n'ont pas fait l'objet d'une approche exhaustive multi-méthodes (c.-à-d. en croisant les résultats de plusieurs méthodes géophysiques, à la fois pour l'hétérogénéité verticale et l'hétérogénéité horizontale). Une stratégie d'auscultation impliquant une approche exhaustive multi-méthodes serait donc forte utile pour la définition détaillée et approfondie de la géométrie physique interne d'un remblai hétérogène urbain (épaisseur du remblai, volume de remblai, zones de débris, type de débris, etc.).

Ainsi, l'article 1 présente une application exhaustive d'une approche multi-méthodes de la caractérisation géophysique de l'hétérogénéité d'un site urbain contaminé visant à 1) valider la présence et la nature d'anomalies dans un remblai urbain par l'interprétation croisée de résultats obtenus avec différentes méthodes géophysiques et 2) améliorer la schématisation de la structure, tant verticale qu'horizontale, de l'hétérogénéité physique du remblai urbain (ou géométrie physique interne). L'objectif global est ainsi d'améliorer et d'optimiser une stratégie d'échantillonnage d'un site contaminé en délimitant des zones de propriétés contrastées en vue de réduire l'incertitude durant la caractérisation du site. Cet article présente notamment la stratégie d'auscultation développée ainsi que l'approche expérimentale utilisée en vue de déterminer son apport relatif à l'amélioration de la définition de la géométrie physique interne d'un site par rapport à une approche de caractérisation conventionnelle basée sur la réalisation de stations ponctuelles d'échantillonnage.

2.2.2 Représentativité des échantillons

Le concept de « représentativité des échantillons » fait l'objet du chapitre 4 (article 2).

Bien que l'on mentionne la nécessité d'obtenir des échantillons représentatifs dans les guides actuels d'échantillonnage publiés par diverses organisations de différents pays (p. ex. ASTM, 2006; CCME, 1993; DEP, 2001; IAEA, 2004; 2002; ISO, 2002; MEO, 1996; 2011; SPIGEC, 1999; Standards Australia, 2005; USEPA, 2002; 2011), très peu de guides proposent une définition quantitative de la représentativité et un cadre formel pour développer des procédures d'échantillonnage représentatif (p. ex. Gerlach et Nocerino, 2003; Mason, 1992). Toutefois, aucun guide ne propose à la fois un cadre formel et pratique adapté à l'échantillonnage environnemental de sites urbains contaminés.

Dans le domaine minier, il existe la théorie de l'échantillonnage des matières morcelées (TEMM), développée par l'ingénieur français Pierre Gy (théorie appelée aussi « théorie de Gy » en français ou Gy's Sampling Theory and Practice (STP) en anglais), qui fournit un cadre rationnel et pratique à l'échantillonnage de minerai ainsi qu'à la quantification de la représentativité des échantillons prélevés. Néanmoins, les fondements de cette théorie n'ont pas encore fait l'objet d'une application formelle et exhaustive dans le domaine des sites contaminés.

Ainsi, l'article 2 présente une application formelle et exhaustive de la TEMM, à la fois au niveau des fondements qualitatifs et quantitatifs de cette théorie, pour le développement d'une procédure d'échantillonnage représentatif spécifique aux sites urbains contaminés. Cet article présente l'approche expérimentale utilisée afin de mener à une comparaison exhaustive entre la procédure d'échantillonnage conventionnel (c.-à-d. le grappillage) et la procédure développée basée sur les fondements de la TEMM. La quantification de la représentativité spécifique à chaque procédure a été effectuée pour chacune des étapes menant de l'échantillon primaire sur le terrain jusqu'au sous-échantillon final utilisé pour l'analyse chimique.

2.2.3 Distribution spatiale de la contamination

Le concept de « distribution spatiale de la contamination » fait l'objet du chapitre 5 (article 3).

L'approche conventionnelle d'interprétation spatiale de la contamination basée sur la méthode des polygones ne permet pas la caractérisation de la structure spatiale de la contamination ni la quantification de l'incertitude liée aux estimations (p. ex. la concentration estimée à un point spécifique du site ou le volume estimé de sols contaminés).

Les méthodes géostatistiques permettent à la fois l'estimation de volumes et l'incertitude liée à ces estimations. Dans le domaine des sites contaminés, les méthodes géostatistiques ont été notamment utilisées pour estimer des volumes de sols contaminés dépassant une valeur-seuil réglementaire, pour calculer à un point donné la probabilité de dépasser ces valeurs-seuils et pour évaluer l'incertitude sur les estimations. Toutefois, les cas réels d'application sont très peu répandus et la plupart des études de cas portant sur le sujet demeurent dans le milieu académique. De plus, les exemples d'application portent très souvent sur des cas en deux dimensions d'une contamination de surface et pour l'analyse spatiale d'un seul contaminant. L'intégration des procédures géostatistiques développées au sein de la pratique courante est notamment ralentie par le manque d'adaptation de ces procédures au contexte réel des sites urbains contaminés, qui présente généralement une contamination à la fois multi-éléments (c.-à-d. une multitude de contaminants) et en trois dimensions.

Ainsi, l'article 3 présente une procédure géostatistique développée pour une contamination multi-éléments en trois dimensions qui vise à : 1) optimiser l'emplacement et le nombre de stations d'échantillonnage durant des phases complémentaires de caractérisation, 2) estimer les volumes contaminés et 3) quantifier l'incertitude liée à ces estimations. En outre, la procédure développée vise à permettre la catégorisation du sol en fonction de la probabilité de dépassement des seuils réglementaires en utilisant un cadre formel servant d'appui lors de la prise de décision des différents intervenants. Cet article présente notamment, à partir d'un

ensemble de données obtenues suivant les travaux de l'article 2, une procédure d'optimisation de la stratégie d'échantillonnage qui, en débutant avec un sous-ensemble initial de données, simule l'ajout progressif de données suivant l'algorithme d'optimisation développé. La comparaison entre les résultats géostatistiques obtenus avec un plan d'échantillonnage optimisé (c.-à-d. avec un nombre restreint de données) et celui avec la totalité des données y est finalement présenté.

2.3 Site à l'étude

L'ensemble des travaux de recherche de la présente thèse doctorale a été réalisé sur un réel site urbain contaminé. Celui-ci est en fait la propriété de l'École de technologie supérieure. Il a été choisi non seulement en fonction de l'accès privilégié possible durant les travaux de terrain mais également pour la présence d'un remblai hétérogène urbain, conférant ainsi au site une très forte hétérogénéité physique et chimique.

Le site à l'étude est situé près du centre-ville de Montréal, dans un secteur à vocation à la fois commercial, industriel, résidentiel et institutionnel. Il est délimité précisément par les rues Notre-Dame Ouest, William, de la Montagne et Eleanor. Ce site avait fait l'objet de caractérisation conventionnelle de phases I et II en 2004 (Quéformat, 2004a; 2004b). Puisque la revue de l'historique du site (phase I) avait révélé plusieurs sources potentielles de contamination (p. ex. présence de remblai lié aux différents phases de construction/démolition sur le site, activités liées à un ancien atelier d'usinage, présence potentielle de réservoirs souterrains et de débris de démolition enfouis, proximité d'anciennes stations-service, utilisation probable de charbon pour le chauffage des bâtiments), la caractérisation s'était poursuivie par une phase II pour confirmer la présence ou l'absence de contaminants et, au besoin, d'évaluer l'ampleur de la contamination. Cette étude avait notamment conclu à la présence de deux types de contamination : une contamination liée à la présence de produits pétroliers résiduels et une contamination liée à la nature du remblai en place. Des sols présentant un niveau de contamination dépassant le critère C avaient d'ailleurs été retrouvés à plusieurs endroits sur le site en ce qui a trait aux métaux, aux

hydrocarbures aromatiques polycycliques et aux hydrocarbures pétroliers. Également, la présence d'une forte proportion de débris de démolition avait été décelée par endroits, jusqu'à près de 100% dans certains cas.

Puisque l'historique du site ainsi que la nature des contaminants et matériaux retrouvés sur le site est typique des remblais hétérogènes urbains rencontrés couramment dans la pratique, le site à l'étude représente donc un cas idéal, à la fois d'hétérogénéité et de complexité, afin de valider la stratégie de recherche développée.

CHAPITRE 3

GEOPHYSICAL CHARACTERIZATION OF CONTAMINATED URBAN FILLS

Jean-Philippe Boudreault¹, Jean-Sébastien Dubé¹, Michel Chouteau², Thierry Winiarski³ and
Éric Hardy⁴

¹Department of Construction Engineering, École de technologie supérieure,
1100 Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, Canada, H3C 1K3

²Department of Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique,
2900 Boulevard Edouard-Montpetit, Montréal, Québec, Canada, H3T 1J4

³Laboratoire des sciences de l'environnement, École nationale des Travaux publics de l'État,
3 rue Maurice Audin, 69518, Vaulx-en-Velin, France

⁴Groupe Qualitas inc. – Division Montérégie,
591, rue Le Breton, Longueuil, Québec, Canada, J4G 1R9

Cet article a été publié dans la revue *Engineering Geology* le 23 novembre 2010.

La référence complète est :

Boudreault, Jean-Philippe, Jean-Sébastien Dubé, Michel Chouteau, Thierry Winiarski et Éric Hardy. 2010. « Geophysical characterization of contaminated urban fills ». *Engineering Geology*, vol. 116, n° 3–4, p. 196-206.

Abstract

This study presents the use of geophysical methods as a preliminary step in the characterization of urban fills, namely for the assessment of the spatial variability of their internal structure. The test site is located near downtown Montréal (Québec, Canada) and had a surface area of 1600 m². A heterogeneous fill was encountered on the entire site and mainly consisted of a matrix of remolded natural soil material mixed with various debris (e.g. concrete, brick, metal), as well as industrial and domestic wastes (e.g. ash, slag, clinker, coal). Old foundation walls were suspected to be still in place in the fill at the location of previous buildings. The results obtained show that a combination of geophysical methods sensitive to different physical properties of the subsurface is necessary to confirm the

presence of heterogeneities, their nature, and assess their lateral and vertical extent in urban fills. To validate the nature of the anomalies detected during the geophysical survey, trench excavation and sampling were performed after completion of the geophysical survey. By cross-analyzing the horizontal imaging methods and vertical imaging methods, it was possible to delineate zones of distinctive heterogeneity and establish the contact between the fill and the natural soil material. Thus, as opposed to conventional characterization techniques, which rely on trench excavation or borehole drilling and only provide a localized estimation of fill properties, geophysical methods helped in imaging the external and internal geometry of a fill in a continuous manner.

Keywords: Brownfield, characterization, electromagnetic induction, magnetic radiometry, electrical resistivity imaging, ground-penetrating radar

3.1 Introduction

In many cities worldwide, urban development has reached the fringes of old industrial areas, where industrial downsizing has produced a sizeable number of brownfields. These are often orphan sites contaminated with various pollutants which still remain undeveloped even after several decades of not being used. In recent years, however, brownfields have been recognized as providing beneficial opportunities for urban land redevelopment (Meju, 2000; TRNEE, 2003). It is recognized that their remediation and reuse slows down urban sprawl and its associated impact on the environment (e.g. extension of urban infrastructures, development of “green” fields, pollution). Hence, there is a growing need to assess the environmental quality of these sites. However, the environmental assessment of brownfields is difficult due to their large physical and chemical heterogeneity. This heterogeneity comes from the landfilling of various solid wastes and remolded soil (endogenous or exogenous) from which they were constituted over time. Common contaminants found in brownfields, or urban fills as they will be referred to from here on, are metals (e.g. Cd, Cr, Cu, Pb, Zn) and pyrogenic polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in incineration wastes like clinker and ashes. Large debris are also a very common occurrence in these fills and usually include coal,

clinker, slag, solidified tar, concrete, bricks, wood, and metal scraps. Moreover, large buried structures such as foundation walls or underground tanks are common. These highly heterogeneous fills are very difficult to characterize using conventional drilling and sampling methods because of their large spatial heterogeneity in terms of contaminant concentrations and physical characteristics. It results in a significant uncertainty of the characterization data, a situation which has consequences for the cost estimation for the management and remediation of these sites (Woll et al., 2003). This uncertainty slows down the overall effort in urban redevelopment, which results in missed opportunities to generate important public benefits. In Canada alone, public benefits associated with brownfield redevelopment are estimated at \$7 billion annually (TRNEE, 2003). Therefore, the control of this uncertainty during environmental assessment is a key factor in facilitating the remediation of urban fills. A first step in controlling this uncertainty is through a more detailed characterization of the heterogeneity of the fill in order to improve sampling programs, the representativeness of hydrogeological modeling and the efficiency of remedial actions.

Characterization of the heterogeneity may be undertaken by increasing the number of samples obtained through the use of conventional methods (i.e. concentration measurements following bore-hole drilling/trench excavation and sampling) but with the inevitable result of increasing the costs in direct relation with the number of additional data points. Another approach would be to use measurement methods that can produce complementary data that would fill-in the gaps between the “conventional” data points and therefore improve the representation of the physical and chemical heterogeneity of the fill. Geophysical methods are ideally suited for this endeavor because they can measure physical properties of the soil in a non-invasive, non-destructive and near-continuous manner at a scale that overlaps the small scale of spatially localized measurements of contaminant concentration. These properties can in turn be related to the nature and organization of the fill constituents (Meju, 2000).

The literature on the use of geophysical methods for the characterization of urban fills is scarce (e.g. Holt et al., 1998; Mundell et al., 2004). However, similar media have been

characterized using geophysics, namely old/abandoned landfills or heterogeneous alluvial and fluvioglacial deposits, and it is worthwhile to learn from these experiences and try to transpose the most appropriate methods to the problem of characterizing urban fills. The use of geophysics for the characterization of landfills and contaminant plumes has been widely reported and methods which were successfully employed in these cases are those that measures electrical properties of the subsurface. Since leachate-generating buried wastes and contaminated groundwater usually exhibit electrical properties which contrast with the surrounding medium (e.g. aquifer matrix), electrical resistivity tomography and electromagnetic induction techniques are reported as successful methods for these problems (Frohlich, Barosh et Boving, 2008; Guérin et al., 2004; Meju, 2000; Noguera et al., 2002; Pellerin, 2002; Soupios et al., 2007). They have notably been used to determine the boundaries and geometry of contamination enclaves in the subsurface (i.e. landfills or contaminant plumes). If there is no electrically conductive surface layer (e.g. compacted clay cap on landfills), ground-penetrating radar (GPR) is also largely reported as being successful in identifying buried heterogeneities such as underground tanks or buried structures. The use of this method has also been reported for the determination of the structural organization of heterogeneous natural soil deposits (Asprion et Aigner, 1999; Beres et al., 1999; Beres et Haeni, 1991; Eismwirth et Hoetzl, 1995; Goutaland et al., 2008; Huggenberger, Meier et Pugin, 1994; Kowalsky, Finsterle et Rubin, 2004; Neal, 2004; Zappa et al., 2006).

Similar to the definition proposed by Meju (2000) for old/abandoned covered urban landfills, we define urban fills as deposits having a complex external and internal geometry and a heterogeneous physical and chemical composition. Furthermore, they may undergo biogeochemical and physical alteration (Norra et al., 2008; Schwartz et al., 2001) because their recent anthropogenic formation, at least compared to a mature soil, puts them in a state of non equilibrium with the environmental stresses (e.g. infiltrating water, vegetation growth) they are subjected to. Geophysical methods should then be selected for their capacity to provide quality data on these characteristics of urban fills. Moreover, each method will react differently to these characteristics, and since one method can only provide a singular solution to the urban fill as a geophysical problem, a measurement strategy involving several methods

is advisable in order to be able to confirm the presence and nature of the geophysical anomalies detected in a fill. Since urban fills generally contain various anthropogenic materials and wastes, some electrically resistive (e.g. concrete debris) and others electrically conductive (e.g. metal scraps, slag, ash), electric resistivity imaging (ERI), and electromagnetic induction (EM) should be considered. Magnetic gradiometry can also be considered to locate ferrous metallic debris and buried metallic structures. Furthermore, urban fills tend to be less compacted than the underlying natural soil material, and thus have a substantially larger hydraulic conductivity and smaller water retention capacity. They are also generally superficial and mostly above the groundwater table. All these characteristics give them physical and geophysical properties which are distinctively contrasted with those of the underlying natural soil material. This is a further justification to include ERI and EM methods in a geophysical survey, but also GPR which will be sensitive to the strong contrast in properties at the boundaries of the fill with the surrounding natural soil. A measurement strategy involving these methods would therefore be useful in defining the geometry (size and shape) of the fill.

We have studied the use of a multi-method approach to the geophysical imaging of heterogeneous urban fills with the objective of being able to 1) validate the presence of anomalies in a fill using cross-validation between the methods and geophysical modeling as well as to 2) improve the representation of the structure of a fill in comparison to the one obtained through the conventional approach to environmental site assessment. The ultimate objective is to improve and optimize the soil sampling strategy by delineating zones of contrasting properties to reduce uncertainty during site characterization.

3.2 Materials and methods

3.2.1 Site location

The urban fill under study is located near downtown Montréal (Québec, Canada) in a former mixed residential/commercial/industrial section of the city. Following a decrease in the industrial activity in this quarter during the last century, many sites, often contaminated by

heterogeneous fill materials, were left abandoned or were simply not redeveloped by their owner. However, due to a recent boom in real-estate development, the economic pressure to reuse these sites has increased. The study site has a surface area of 1600 m² and is part of a larger site undergoing redevelopment. A general view of the site is presented in Figure 3.1, on which the location of existing and demolished buildings is shown.

3.2.2 Fill description

The environmental assessment of the site had been conducted by a consulting firm (Qualitas-Quéformat) prior to our geophysical work. This work had been completed in 2004 using conventional methods described in the guidelines of the Quebec Ministry of the Environment (MDDEP, 2003), namely trench excavation, sampling and chemical analysis in a fixed laboratory. In the area of the site under study, 5 trenches were excavated (PE-10, PE-11, PE-26, PE-27 and PE-28 on Fig.1) as well as 4 boreholes (F-2, F-9, F-33, F-33A on Fig.1). Results of the environmental assessment showed that the fill encountered in all trenches had an average thickness of about 2 meters.

The fill was contaminated with metals (e.g. Cd, Cu, Pb, and Zn) and PAHs. These contaminants were found in most trenches in variable concentrations; often exceeding the threshold values established in Quebec's regulation on the remediation of contaminated sites. The fill mainly consisted of a matrix of remolded natural soil material (mixture of silt, sand and gravel) mixed with various debris (e.g. concrete, brick, metal, wood, glass, porcelain, paper), as well as industrial and domestic wastes (e.g. ash, slag, clinker, coal, shells). These debris and wastes were found in proportions of up to 100% of the volume of the fill (see Figure 3.2). Old foundation walls were suspected to be still in place in the fill at the location of previous buildings. However, these structures were not observed during the environmental assessment (in 2004) but were found during the phase of trench excavation (in 2007) and the mass excavation phase (prior to the construction of the new buildings on the site). The density of the fill was described as loose to very loose.

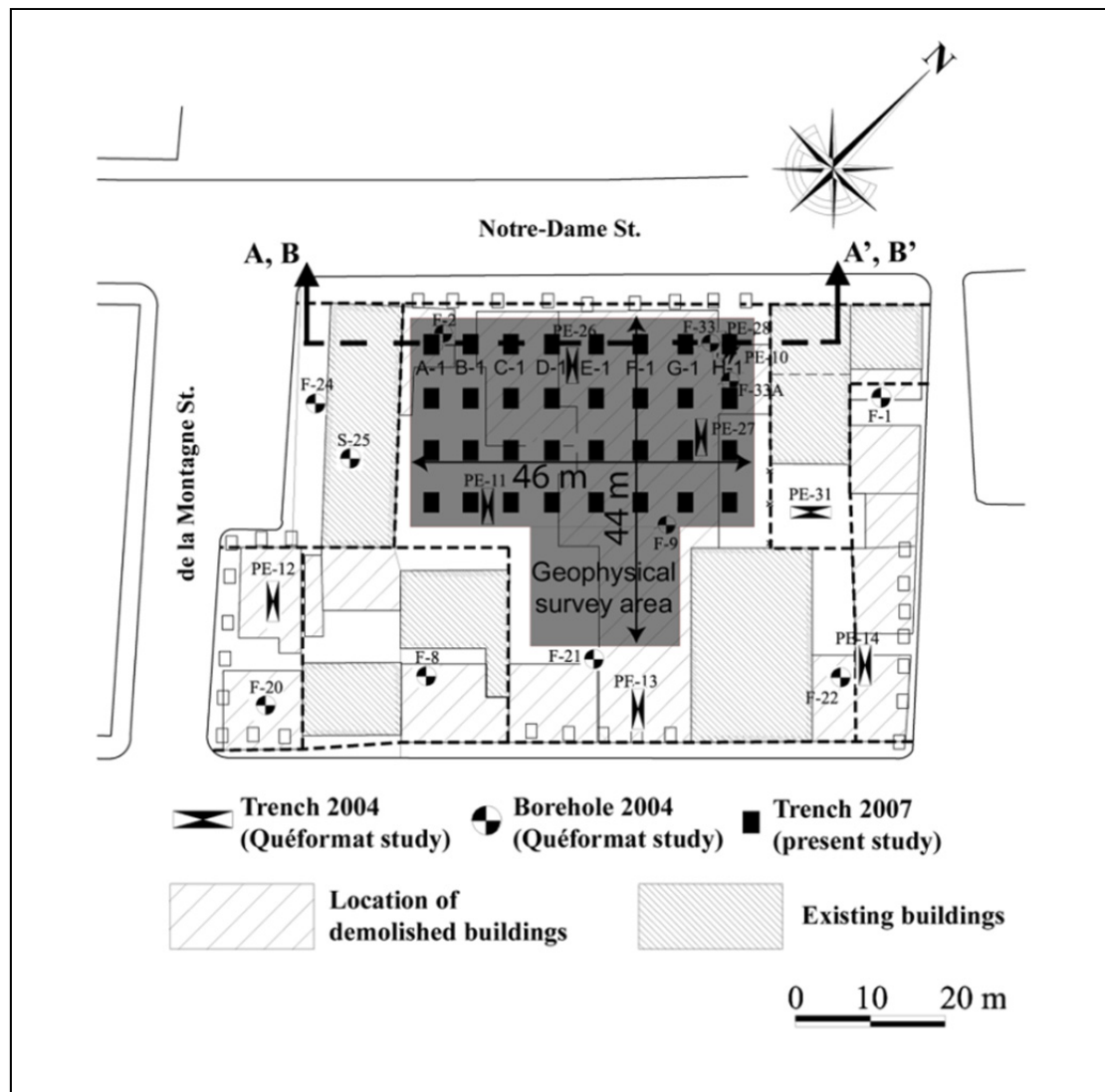


Figure 3.1 General view (plan view) of the study site
(The shaded zone delimits the survey area. Limits of existing
and demolished buildings are indicated.)

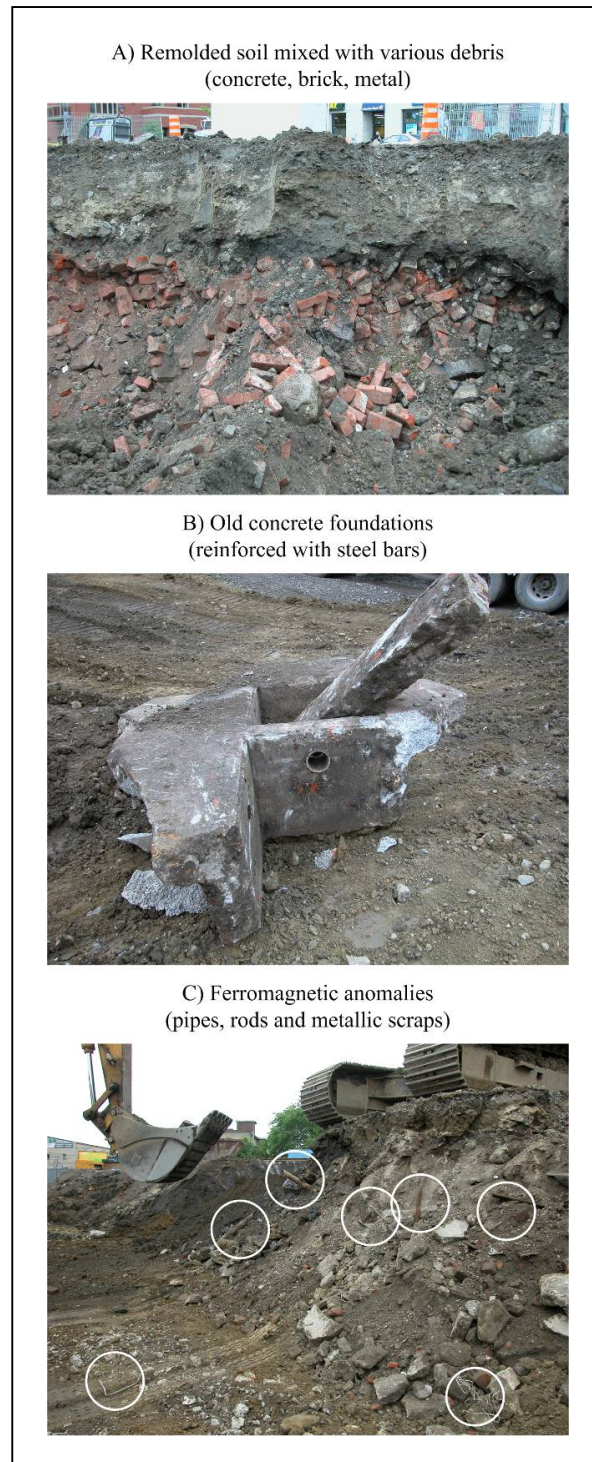


Figure 3.2 Pictures of the fill taken during the mass excavation phase carried out after the geophysical characterization

3.2.3 Geophysical characterization of the fill

Four geophysical techniques were used to characterize the structure of the fill: two horizontal imaging techniques (electromagnetic induction and magnetic surveys) and two vertical imaging techniques (electrical resistivity imaging and ground-penetrating radar). The first two techniques were chosen for their speed and ease of implementation since they do not require a contact between the apparatus and the ground. This explains the larger measurement density achieved with these techniques (see Figure 3.3). In comparison, the electrical resistivity imaging technique required pushing electrodes into the ground and is therefore a much longer technique to implement. For this reason, we have limited our investigation to six profiles with this technique. The location of these profiles was selected according to the history of the site while ensuring a uniform coverage of the site. The fourth technique, the ground-penetrating radar, is relatively easy to operate but requires a greater effort than the first two techniques because it requires the apparatus to be dragged on the ground. For all techniques, we carried out perpendicular profiles to characterize the structure of the fill and the direction of the anomalies. All profiles were georeferenced with a field measuring tape by following straight paths and placing markers while measuring.

3.2.3.1 Electromagnetic induction – EM

The system used is the EM31 conductivity meter manufactured by Geonics Limited (Mississauga, Canada). EM profiles were done following north-south and east-west directions. Location of the profiles is shown in Figure 3.3A. They were spaced 2-m apart and data were recorded at 1-m spacing. Every measurement is the average of 25 stacks. This procedure was performed for both the vertical and horizontal dipole modes which yield two different depths of investigation, typically about 6 m and 3 m respectively according to the manufacturer Geonics Limited. The actual depth of investigation depends on the electrical characteristics of the subsurface. Principles and modes of application of the system can be found in Abbaspour et al. (2000).

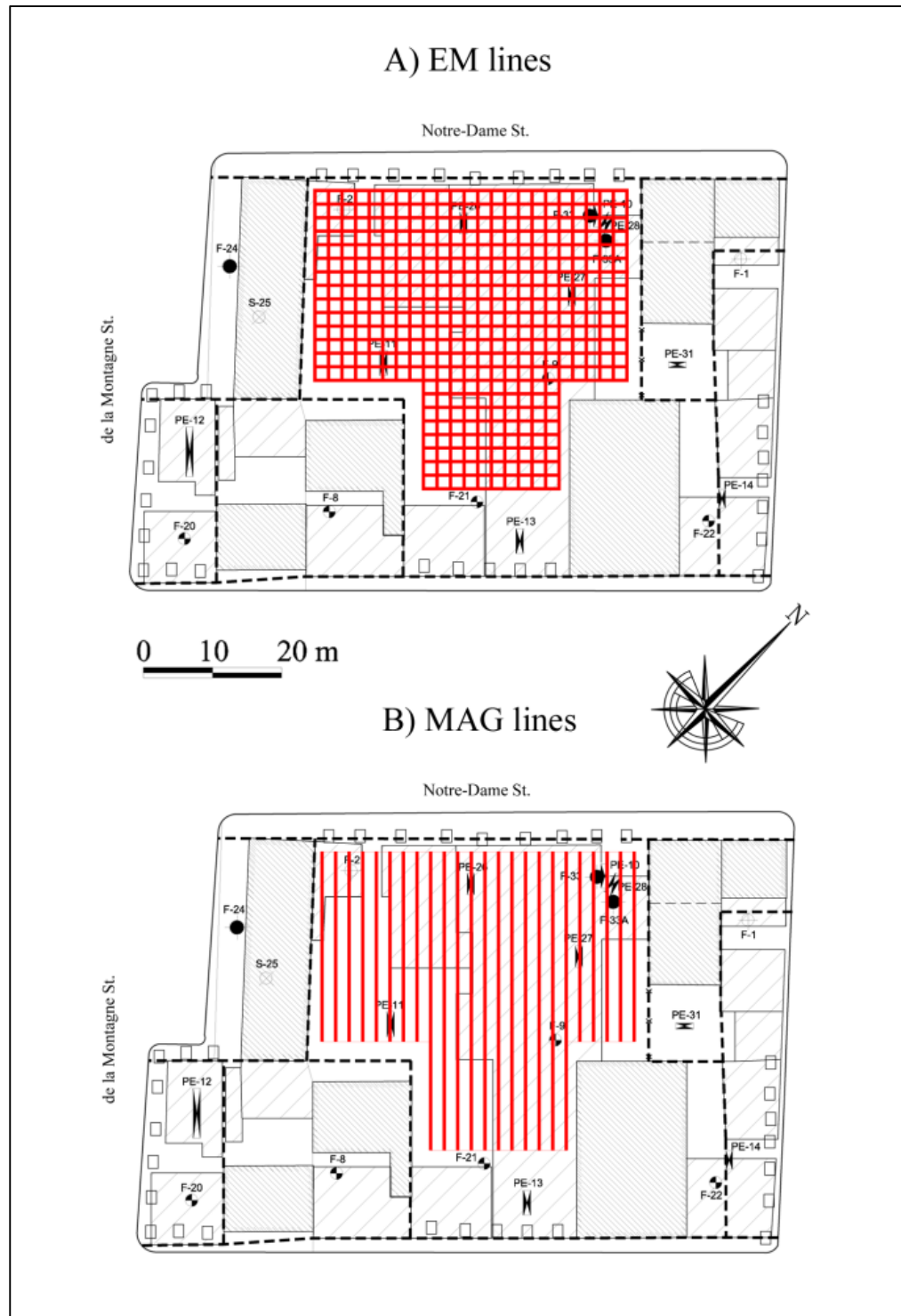


Figure 3.3 Location of a) EM lines, and b) MAG lines

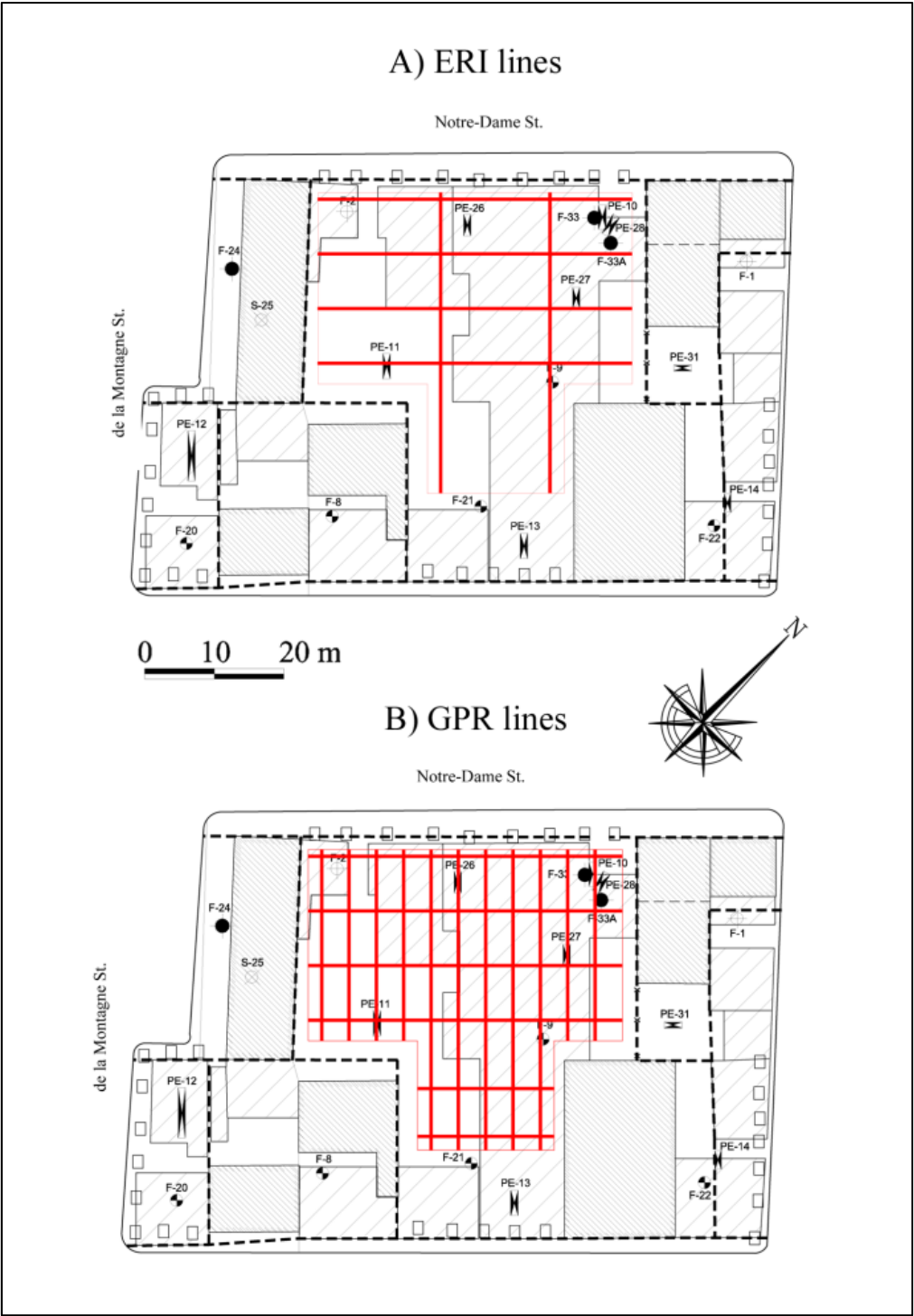


Figure 3.4 Location of a) ERI lines, and b) GPR lines

3.2.3.2 Magnetic survey – MAG

The magnetometer used was a NAVMAG cesium vapor system from Scintrex (Concord, Canada) boasting a resolution of 0.01 nT. This magnetometer uses the optical pumping technique which is described by Reynolds (1997) and Holt et Daniels (2000). North-south profiles were measured at a 2-m interval (Figure 3.3B). The magnetic sensor was held at a distance of 0.15-0.20 m above ground level. Data acquisition was performed by walking along these profiles at constant velocity and at a frequency of ten measurements per second. Marks located every 7 meters along each profile were used to flag the distances in order to position by interpolation every data along the profiles. That led to an average 0.04 m sampling rate along the line.

3.2.3.3 Electrical resistivity imaging – ERI

ERI was performed with a Terrameter SAS 4000 and an ES10-64 switch box with two multiple electrode cables from ABEM (Sundbyberg, Sweden). Two north-south and four west-east ERI profiles were measured, separated by 16 m and 8 m respectively. The location of these profiles is shown in Figure 3.4A. The electrodes were pushed into the fill at a regular interval of 1 meter to obtain a sufficiently high resolution and a depth of investigation of about 5 meters. A dipole-dipole configuration was used to improve the horizontal sensitivity of the method (Reynolds, 1997) since the typical urban fill composition has a large short-scale lateral variability. Robust inversion (with convergence limit fixed to 1%) of the measured data was done using the RES2DINV software from Geotomo Software (Penang, Malaysia).

3.2.3.4 Ground-penetrating radar – GPR

Radar profiles were obtained with a Ramac CU II system from Mala Geoscience (Mala, Sweden) using 100 MHz center frequency antennas. This frequency was selected for a maximal depth of investigation and a vertical resolution of approximately 33 centimeters

(Reynolds, 1997), a quarter of a wavelength for an average dry soil velocity of 0.1 m/ns and an actual center frequency of 75 MHz (once antennas are at the ground level). Principles and modes of application of the system can be found in Neal (2004). Measurements were made along north-south profiles having 4-m spacing as well as west-east profiles having 8-m spacing (Figure 3.4B). Data were recorded at 0.1-m interval along the profiles. The transmitter and receiver antennae were spaced 1 meter using a rigid frame in broadside common offset mode. Data were processed using the REFLEX software from Sandmeier Scientific Software (Karlsruhe, Germany) using the following sequence: 1) static correction, 2) subtract-DC-shift (subtraction of an existing time-independent amplitude shift), 3) bandpass Butterworth filter (centered on the actual center frequency) and 4) background removal. The static correction which consists in aligning first arrivals was needed in order to correct for little trace jolts generated by the uneven ground. The DC shift subtraction was favored here in place of the commonly applied dewow filter in order to preserve as most as possible the true data attributes (amplitude and phase) from trace to trace. No gain was given to the signal in order to compare wave amplitude between the reflectivity profiles. The two-way travel time was converted to depth using an average wave velocity of 0.1 m/ns as determined from the wave diffraction patterns observed in the radar images. This value is similar to estimated velocities within the unsaturated zone of heterogeneous quaternary deposits (Beres et al., 1999; Goutaland et al., 2008; Heinz et Aigner, 2003; Jakobsen et Overgaard, 2002; Kostic, Becht et Aigner, 2005).

3.2.4 Validation of geophysical imaging by trench excavation

A second phase of trench excavation and sampling was performed in 2007 after completion of the geophysical survey to validate the nature of the anomalies detected during the geophysical survey. Trench excavation was performed on a regular grid having 6-m spacing. A total of 32 trenches were dug. Each trench is represented by a black square in Figure 3.1. Trenches were excavated with a mechanical shovel by carefully segregating the different materials encountered with depth. This segregation was performed mainly for sampling

purposes, but also to be able to describe as precisely as possible these materials, namely their composition, grain size and their relative abundance in the fill.

The stratigraphy of the fill was also determined using borehole and trench descriptions according to a west-east axis (shown by the dash line in Figure 3.1). This work was first performed using the data from the preliminary study of 2004 which included borehole F-2 as well as trenches PE-26 and PE-28. Then a second analysis of the fill stratigraphy was done using the field data obtained from this study, which included trenches A-1 to H-1. These two stratigraphic analyses were then compared with corresponding electrical resistivity and radar profiles to validate the geophysical imaging of the internal structure of the fill and conclude on the use of geophysical measurement as a means to bridge the data gap between localized data obtained through trenches and boreholes. It should be noted that, in reality, the average thickness of the fill was 1.8 m using the 32 new trenches, slightly smaller than 2 meters found with the data of the preliminary environmental assessment performed in 2004.

3.3 Results

3.3.1 EM conductivity

Figure 3.5A shows maps of the apparent electrical conductivity of the soil (in mS/m) obtained in the horizontal (i) and vertical (ii) dipole modes. By comparing the two maps, it is possible to differentiate superficial anomalies (i.e. located at depths typically less than 3 meters) from anomalies located deeper from the surface (i.e. at depths of 3 to 6 meters). Therefore, an anomaly that would be observed in the vertical mode only would be located between 3 to 6 meters from the surface, whereas an anomaly observed in both modes or in the horizontal mode only would be located at a maximum depth of 3 meters. Note that anomalies displayed on vertical mode only may also indicate poor EM coupling of the horizontal mode with conductive structures of limited extent. Three distinctive conductivity anomalies are displayed in Figure 3.5A. They are correlated with shallow depths (0-3 m) since observed on both dipole modes. The nature of these anomalies will be discussed in the following sections.

Comparing Figure 3.5A-i and Figure 3.5A-ii, we note a general increase in electrical conductivity of about 10 mS/m for depths greater than 3 meters. This change in the electrical conductivity of the soil with depth could be related to changes in the conductivity of both the soil matrix (change in mineralogy) and the interstitial water (change in moisture content). Results of the 32 trenches provide data that support this assumption. The fill has an average thickness of 1.8 meters according to that investigation and it consists of various large electrically resistive debris (i.e. concrete, brick). Moreover, it has a loose to very loose structure providing it with a small water retention capacity. In comparison, the underlying natural soil material of glacial origin has a large silt fraction, is much finer and compact, and therefore has a larger water retention capacity than the fill. Finally, the preliminary site assessment showed that the water table was located below the fill at depths between 3 and 6 meters. Some high conductivity anomalies can be observed in Figure 3.5A close to the limits of existing buildings. They are lateral effects caused by the reinforced building walls.

3.3.2 Magnetic survey

The total field magnetic data was corrected for diurnal drift and the vertical gradient of that total field data was computed to enhance anomalies caused by shallow sources (Figure 3.5B). It displays several isolated anomalies which can be related to ferromagnetic metallic objects. Three sectors can be identified where metallic objects are more concentrated than elsewhere in the fill. In urban fills, such metallic objects are usually buried demolition debris, for example, reinforced steel bars in concrete debris or underground structures such as old foundations, pipes, metallic rods and plates, as well as various unidentified metallic scraps. Using the analytical signal approach of Salem et al. (2002), we have interpreted the isolated anomalies as caused by dipolar sources at depths ranging between 1.40 to 2.10 m. During trench excavation and mass excavation, various metallic objects corresponding to this list were found within these three sectors (see Figure 3.2), mostly at depths between 1.0 to 2.2 m.

The results also indicate that there is a correspondence between the electric conductivity anomaly 1 (Figure 3.5A-i&ii) and the area free of ferromagnetic anomalies between sectors 1 and 2 (Figure 3.5B). This means that anomaly 1 has a larger electric conductivity while being free of metallic debris. During trench excavation and mass excavation, a smaller relative amount of debris was found at this location and the fill material was fine-grained. Ferromagnetic objects are often buried with other coarse electrically resistive debris, like concrete rubble or bricks. In addition, coarser fragments will give a loose structure to the fill where they are present in large proportion, leaving little contribution to water retention and again increasing the apparent electrical resistivity of the fill. The results of the trench excavation show that the fill was thinner in the area of anomaly 1 (an average fill thickness of 1.4 meters comparatively to 1.8 meters for the entire site). This can be seen in Figure 3.6, where the thickness of the fill is displayed by a dashed line. At a distance of about 14 meters (first three ERI profiles on the left), the thickness is smaller than the rest of the site. Therefore, conductivity anomaly 1 is caused primarily by more compact remolded soil, a smaller proportion of debris (both ferromagnetic and coarse electrically resistive debris), a larger fine-grained content (i.e. larger water retention capacity), and a smaller fill thickness than sectors 1 and 2. A similar analysis can be made about the nature of anomaly 2 (Figure 3.5A-i&ii), which is also located in a sector having a smaller relative amount of ferromagnetic debris (Figure 3.5B) and a fill thickness of about 1.5 meters.

The correlation between anomaly 3 (Figure 3.5A-i&ii) and sector 3 (Figure 3.5B) remains difficult to explain since no trench was dug in this sector. One possibility is that in sector 3, the fill could contain several superficial ferromagnetic objects mixed with concrete debris, bricks, and old foundation walls. In fact, a relatively conductive anomaly surrounded by coarse electrically resistive debris can be seen at a depth of 0 to 3 meters on the ERI profile located in this sector (first ERI profile on the right at 34 meters, see Figure 3.6A).

3.3.3 ERI

Figure 3.6A shows the electrical resistivity model of the fill (in ohm-m) through six profiles (four east-west and two north-south profiles). The thickness of the fill is represented by a dashed line on these profiles. It is possible to distinguish two zones on the first profile of Figure 3.6A: a first, more resistive (> 50 ohm-m on average), and having a thickness of about 2 meters and a second, less resistive (< 30 ohm-m) and located deeper than 2 meters. This contrast in electric resistivity corresponds roughly to the average thickness of the fill (1.8 meters). According to the trench excavation, the more resistive zones in the fill were related to a significant proportion of demolition wastes such as bricks and concrete rubble. The maximum apparent resistivity which was measured was close to 2000 ohm-m. For instance, concrete can have a resistivity between 10 to 2000 ohm-m whether it is weathered or not, respectively. As mentioned previously, the debris are very coarse and have very small water retention capacity. In general, they remain largely unsaturated. For comparison, dry gravel can have electrical resistivity in excess of 1000 ohm-m.

Figure 3.6A also shows that the resistivity anomaly has a large lateral continuity. During trench excavation, it was observed that the northernmost sector of the fill (i.e. along Notre-Dame Street) was mainly made of buried bricks (see Figure 3.2).

By considering all ERI profiles, other electrically resistive sectors (containing demolition wastes) can be identified and located mainly in the fill, i.e. at the top of the dashed line. The isometric view presented in Figure 3.7B-i also shows most anomalies are continuous over several meters.

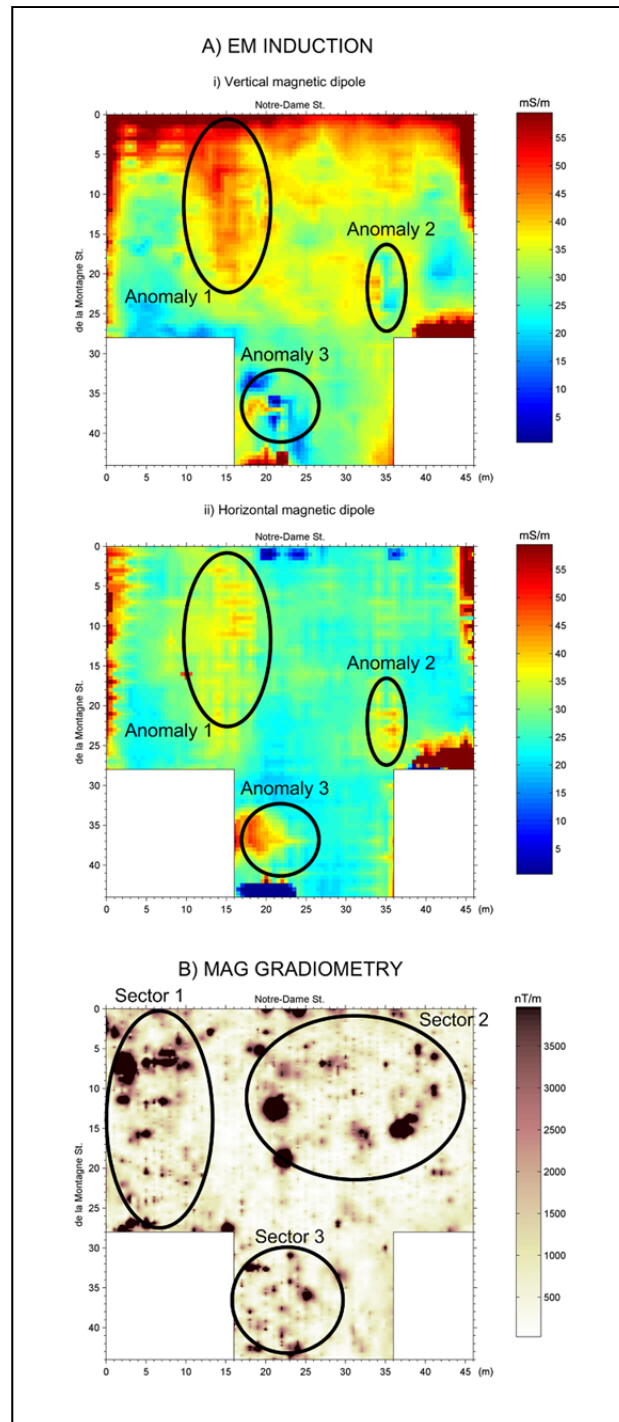


Figure 3.5 Results of a) EM induction (i- vertical magnetic dipole and ii- horizontal magnetic dipole), and b) MAG gradiometry

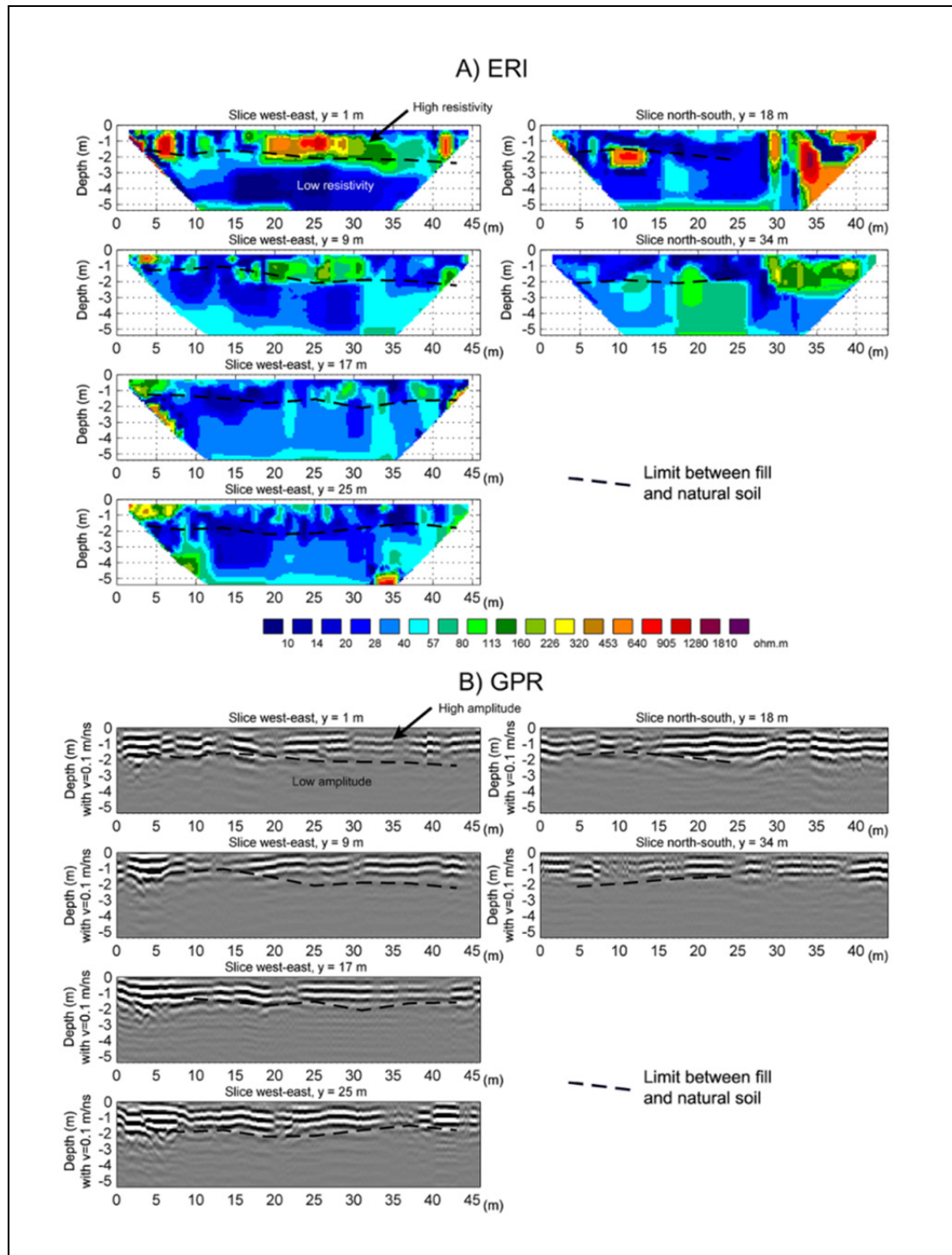


Figure 3.6 Profiles of a) ERI, and b) GPR

3.3.4 GPR

Figure 3.6B shows six ground-penetrating radar profiles which were obtained at the same locations as the ERI profiles. On these profiles, it is possible to distinguish zones of large wave amplitudes (positive and negative) displayed as alternating bands of black and white, and zones of smaller wave amplitudes (closer to zero) having a more uniform grayish tone and a less discernible texture. On all profiles, these two zones are roughly delineated, at a depth of about 1.8 meters, by the dashed line which corresponds to the thickness of the fill. The sharp decrease in wave amplitude at this depth coincides with a large increase in compactness between the fill and the denser underlying natural soil material. The environmental assessment completed in 2004 had identified this material as being a silt and therefore made of very small particles giving the material a large water retention capacity and a higher electrical conductivity. Such media strongly attenuates the propagation of radar waves and therefore decreases the possibility of detecting deeper reflectors. The fill, on the other hand, is coarser, less compact and drier. It is therefore less electrically conductive and does not attenuate the electromagnetic waves as strongly as the silt.

Within a depth of about two meters (or two-way traveltime of 40 ns), it is possible to qualitatively interpret the structure and the texture of the signal, i.e. the flat-lying smoothly varying reflected signal and the discontinuities. Electromagnetic wavefield scatter on coarse debris, such as concrete rubble or bricks, will locally cause a significant local perturbation in the reflected signal. Conversely, in the absence of such coarse debris, the recorded signal shows the same flat-lying pattern. These observations were confirmed on all radar profiles with observations made in the field during the trench excavation and the mass excavation phase.

3.4 Discussion

The relevance of the geophysical surveys in the environmental assessment of urban fills will now be discussed in relation to our experiments.

3.4.1 Internal structure of the fill

A stratigraphic profile of the fill was constructed along transect B-B' (see Figure 3.1) with the results from the complementary site assessment study conducted in 2007 (trenches A-1 to H-1) (Figure 3.7C). For comparison, another profile was also constructed along the same transect (A-A') using the data from trenches and boreholes made during the preliminary site assessment in 2004 (Figure 3.7A). The stratigraphic units were determined according to the proportion of debris mixed with fill soil, namely less than 10% (type-1 unit), 15 - 30% (type-2 unit), 50 - 75% (type-3 unit), more than 75% (type-4 unit), and a superficial crushed stone layer (unit 5). Unit 6 corresponded to the underlying silt (natural soil material). ERI and GPR profiles corresponding to transects A-A' and B-B' were also added to Figure 3.7 (Figure 3.7B-i and Figure 3.7B-ii respectively) along with isometric views of all ERI and GPR profiles. The lower boundaries of the fill and type-4 units were outlined using the stratigraphic profile shown in Figure 3.7C, considered to be the closest to the real stratigraphy of the fill since it was constructed from the largest data set (i.e. from 8 trenches). These limits were superimposed on the other profiles along transect A-A' (i.e. ERI and GPR profiles and stratigraphic profiles from 2004 data).

First, by comparing the profiles made from the 2004 and 2007 data sets (Figure 3.7A and Figure 3.7C respectively), it becomes obvious that the distance between sampling points in a conventional sampling strategy, usually from 15 to 25 meters, is larger than the scale at which spatial variation occur in the structure of the fill. For instance the stratigraphic profile of Figure 3.7A does not show the discontinuity in the type-4 unit at a distance of approximately 13 meters from the western limit of the site. However, the ERI profiles show this discontinuity very clearly. The ERI profile even shows a third resistive anomaly which was not identified by either site assessment study. Therefore, geophysical methods stand out as being powerful tools in providing a continuous image of the fill's internal structure, something even a high-density sampling scheme may still not be able to do.

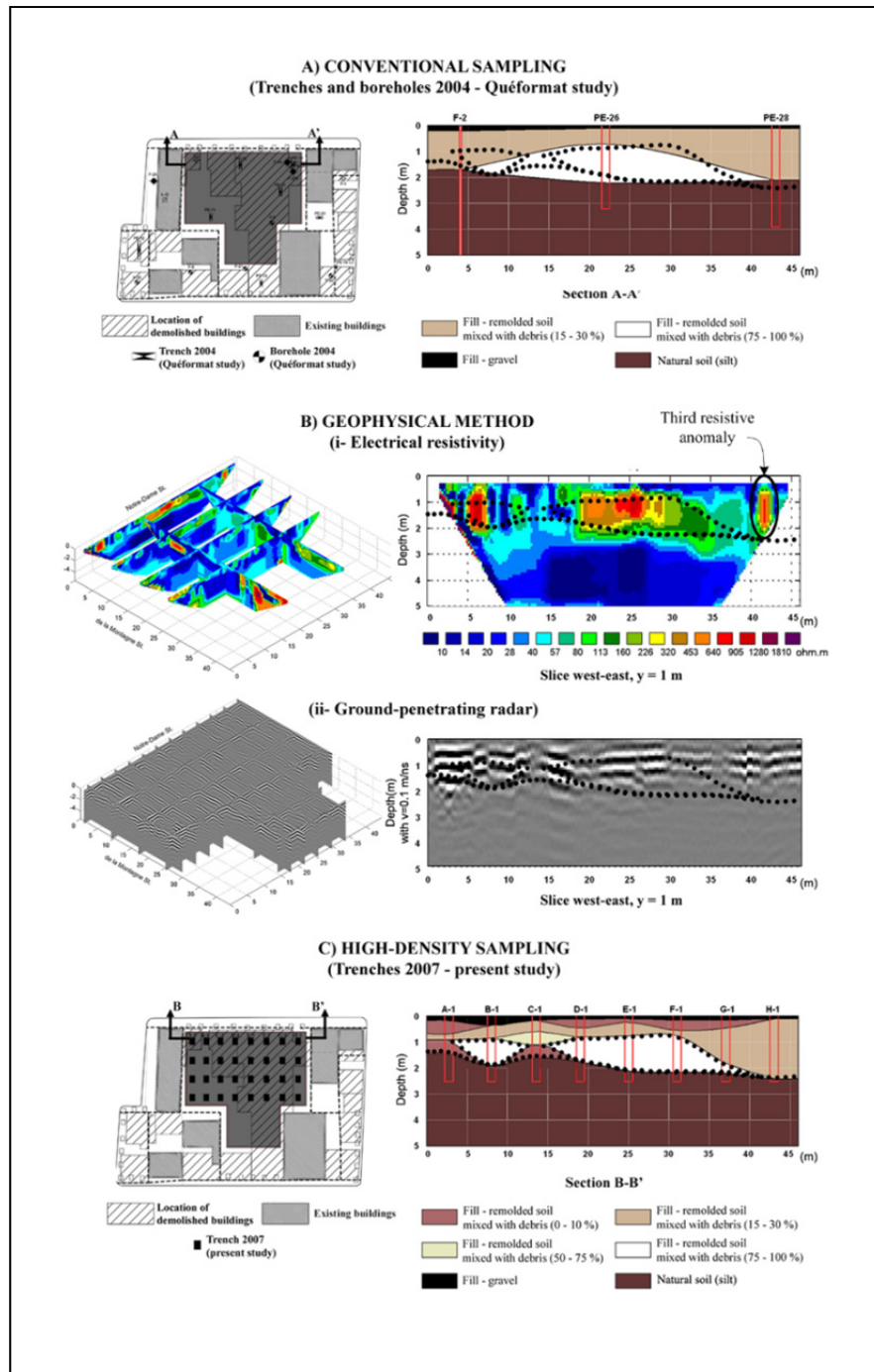


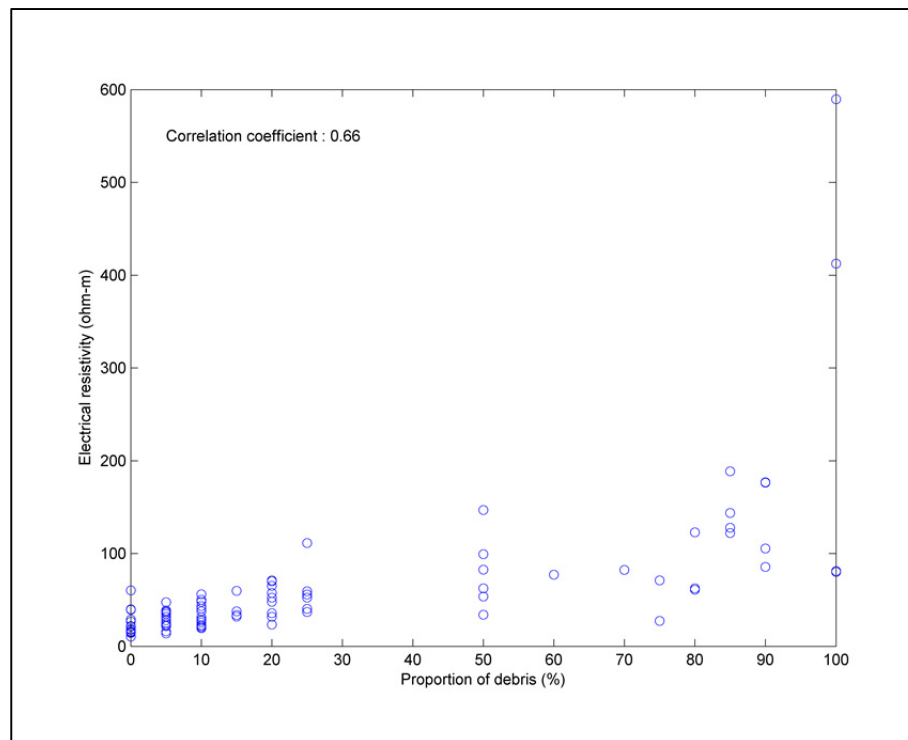
Figure 3.7 Profiles made along the A-A' transect with data from a) conventional sampling (Qualitas-Quéformat study in 2004) b) geophysical methods (i- electrical resistivity and ii- ground-penetrating radar), and c) high-density sampling (trench excavation in 2007) (The dotted curves represent stratigraphy of the fill and the delimitation of type-4 unit obtained along this transect in c) and superimposed on the other profiles for comparison.)

Moreover, by comparing the GPR profile with the stratigraphic profile of Figure 3.7C it is possible to correlate the lower boundary of the fill, as estimated using trench data, with the sharp decrease in the amplitude of EM waves on the radar profile. There is also a small discrepancy between both estimations in the westernmost part of the profiles, where the lower boundary, as estimated from GPR data, is lower than that estimated from trench data. Reasons for this discrepancy could include errors in distinguishing the anthropogenic material from natural soil material in trenches and misinterpretations in the qualitative determination of the transition from fill to natural soil material on GPR profiles.

3.4.2 Correlation between geophysical results and proportion of debris

As shown in Figure 3.7, the electrically resistive sectors on ERI profiles are related to a significant proportion of debris (demolition wastes such as bricks and concrete rubble). This relationship is demonstrated on the entire site in Figure 3.8 by the correlation existing between the proportions of debris noted at each trench site and the values of electrical resistivity corresponding to the same trench position. The correlation coefficient of 0.66 was calculated from 93 pairs of values and showed a relation between the electric resistivity and the proportion of debris in the fill.

Furthermore, the amount of debris in three, randomly selected, trenches (C-2, E-1, and G-3), were compared to the ERI and GPR data. Figure 3.9 shows (i) the amount of debris, (ii) the electrical resistivity, and (iii) the reflected wave amplitude with depth. The thickness of the fill in each trench is presented by a dashed horizontal line. Moreover, threshold values of ± 1000 are indicated on the GPR traces (dashed vertical lines). These values correspond generally to the large wave amplitude drop measured for signal returned from depths below the interface between the fill and the natural soil. The maximum amplitude of the GPR traces are ± 32768 (2^{16}) and ± 1000 is considered to be about the practical noise level for our GPR surveys.



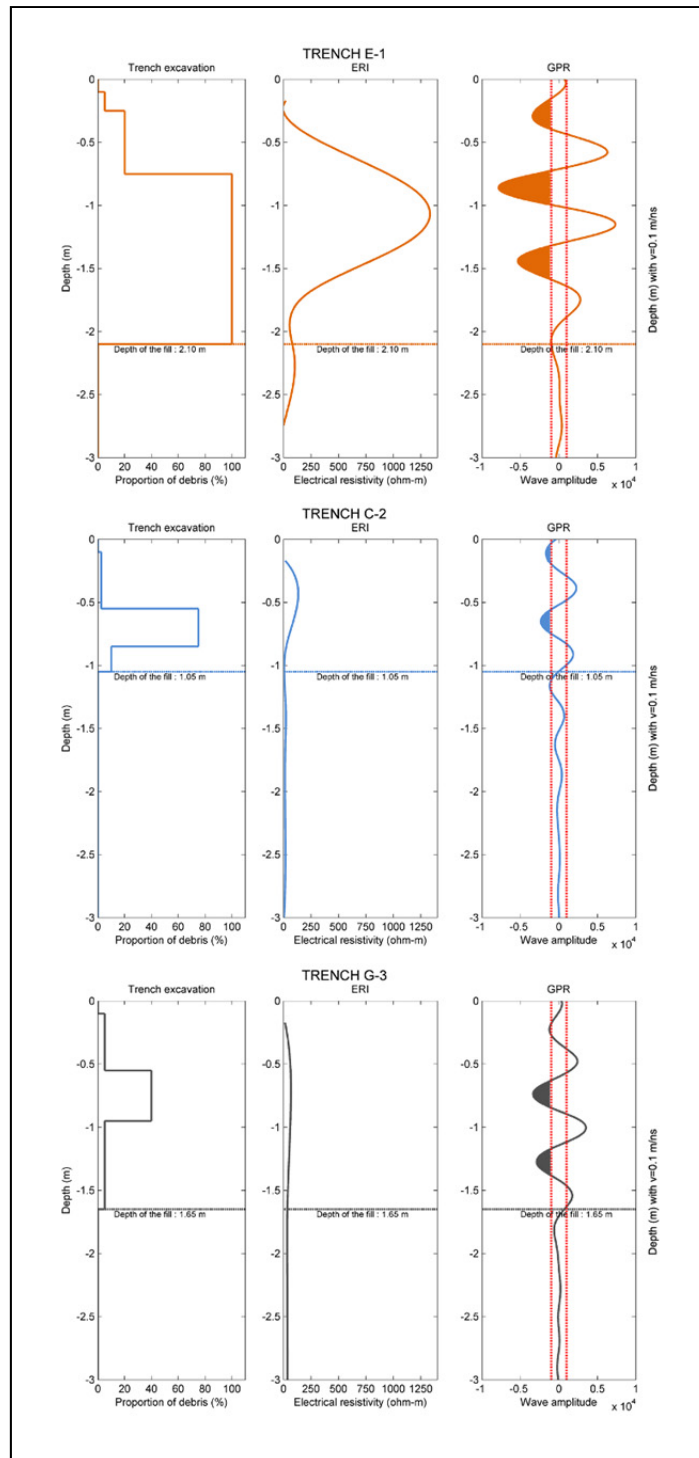


Figure 3.9 Depth profiles for (i) the amount of debris, (ii) the electrical resistivity, and (iii) the reflected wave amplitude in three trenches E-1, C-2, and G-3

3.4.3 Spatial variation of the physical heterogeneity

The spatial variation of the physical heterogeneity within the fill can be described in 2D, either laterally (horizontally) or vertically. In addition, the isometric views of ERI and GPR profiles shown in Figure 3.7 help understanding the heterogeneity in 3-D.

All geophysical methods used in this study provide means to estimate the spatial distribution of the physical heterogeneity of the fill. For instance, as discussed previously, by cross-analyzing the horizontal imaging methods (EM and MAG), it is possible to delineate zones of distinctive heterogeneity (e.g. sectors 1 and 2 as well as anomaly 1). The vertical extension of these zones can be estimated by integrating the vertical imaging methods (ERI and GPR) in the analysis (Figure 3.6A&B).

In this study, geophysical methods have been successfully used to determine the external geometry of the fill. Their use for the determination of its internal structure seems very promising but further work is needed. It will be necessary to optimize the sensitivity of the methods to the size of the anomalies generally encountered. This could be done notably by varying the electrode spacing in ERI, using different radar frequencies, tightening the geophysical survey grid and performing 3-D surveys. The use of other methods would also be beneficial, most importantly induced polarization which could be sensitive to smaller metallic anomalies disseminated in the fill matrix and to variation in grain size distribution.

3.5 Conclusions

Geophysical techniques sensitive to electrical and electromagnetic contrasts in soil have been used in this study to characterize the physical heterogeneity of an urban fill. As opposed to conventional characterization techniques, which rely on trench excavation or borehole drilling and only provide a localized estimation of fill properties, geophysical methods help in picturing the external and internal geometry of a fill in a continuous manner. The primary objective of this study was to assess the potential of a multi-method geophysical survey using EM, MAG, ERI and GPR techniques in improving the characterization of urban fills through

a more precise determination of their geometry and of the nature of the materials they contain.

Following a combined analysis of the results produced by each method, several electric and electromagnetic anomalies were identified. These anomalies were generally found to a maximum depth of 1.8 meters, which globally corresponds to the fill thickness. Moreover, they seemed to be mostly concentrated in specific zones of the fill, a situation which may be linked to the historical use of the site. The spatial continuity of the heterogeneous zones, and therefore the internal structure of the fill, was qualitatively assessed. On the other hand, the external geometry of the fill was successfully described by the ERI and GPR data, as a clear contrast in ERI and reflected wave amplitude was seen at the estimated depth of the boundary between the fill and the underlying natural soil deposits. Using the wave amplitude data directly rather than the profile image would facilitate a quantitative determination of the depth at which a significant decrease in wave amplitude occurs.

Moreover, a volumetric estimation of heterogeneous zones could be performed by first estimating their spatial continuity between ERI and GPR profiles using a cokriging approach which would consider the horizontal imaging results as «soft» supplemental data. A similar approach using kriging was applied to the estimation of the internal structure of fluvioglacial deposits (Goutaland et al., 2008), but it still has to be tested with the large spatial variability of urban fills. Another technique would be to perform an ERI survey on a densely sampled grid and to invert the data for a 3-D resistivity model. Volumes of heterogeneous material could then be directly estimated from the model.

Acknowledgments

The authors would like to thank Qualitas-Quéformat and the École de technologie supérieure for their precious collaboration in giving them access to the environmental assessment data for the site under study. The authors would like to further acknowledge the help of Qualitas-Quéformat in conducting the field work necessary for this study. The authors would also like

to thank the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the 60^e Commission permanente de coopération franco-qubécoise for their financial support to professors Dubé, Chouteau and Winiarski.

CHAPITRE 4

ANALYSIS OF PROCEDURES FOR SAMPLING CONTAMINATED SOIL USING GY'S SAMPLING THEORY AND PRACTICE

Jean-Philippe Boudreault^{1,2}, Jean-Sébastien Dubé¹, Mirela Sona¹ and Éric Hardy²

¹ Canada Research Chair in Contaminated Site Characterization, Department of Construction Engineering, École de technologie supérieure,
1100 Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, Canada, H3C 1K3

²Groupe Qualitas inc. – Division Montérégie,
591, rue Le Breton, Longueuil, Québec, Canada, J4G 1R9

Cet article a été publié dans la revue *Science of The Total Environment* le 15 mai 2012.

La référence complète est :

Boudreault, Jean-Philippe, Jean-Sébastien Dubé, Mirela Sona et Éric Hardy. 2012.
« Analysis of procedures for sampling contaminated soil using Gy's Sampling Theory and Practice ». *Science of The Total Environment*, vol. 425, p. 199-207.

Abstract

Soil sampling is a critical step in environmental site assessment studies. The representativeness of soil samples has a direct influence on financial, liability, environmental and public health issues associated with the outcome of remediation activities. Representativeness must be quantified for assessing and designing soil sampling procedures. Gy's Sampling Theory and Practice (STP) was used to analyze the reproducibility of two soil sampling procedures, namely a procedure based on grab sampling (GSP) and an alternative procedure (ASP) developed from STP principles. Sampling reproducibility, a component of sampling representativeness, was determined by theoretical calculations and experimental measurement of relative variances in trace metals concentrations at each stage of both sampling procedures. The ASP significantly increased the reproducibility of soil sampling compared to the GSP. Larger relative variances occurred during field sampling for the ASP

and during laboratory sampling for the GSP. They were due to subsample mass reduction without control over particle size. Relative theoretical and experimental variances were in agreement. However, large discrepancies were observed for all sampling stages of both procedures between absolute theoretical and experimental relative variances. In the case of Pb, theoretical calculations were closer to experimental measurements when using a calculated value of the liberation factor (l) based on mineralogical data rather than $l = 1$. It was shown that the b -exponent had a large influence on theoretical variances. Increasing the estimate of b from 0.5 to 1 largely improved the agreement between theory and experiment. Finally, 99% of experimental relative variance was explained by sampling errors compared to analytical errors.

Keywords: Sampling, Contaminated Soils, Representativeness, Gy's Sampling Theory, Sampling Errors

4.1 Introduction

In contaminated site assessment and remediation, representative soil samples² are necessary for the statistical estimation of mean contaminant concentrations and contaminated soil volumes above or below regulated threshold values. These estimates are essential for assessing the financial, liability, environmental and public health risks associated with the contamination and the outcome of site remediation activities (Crumbling, Griffith et Powell, 2003).

Because soil sampling is decisive for the quality of environmental site assessment data, the representativeness of soil samples must be quantified and controlled (Crumbling, Griffith et Powell, 2003). However, the means to do so have been seldom provided by guidance and

² By definition, a *sample* is a representative subset correctly collected from a lot, whereas a *specimen* is not (Gy, 2004a). However, *representative sample* is used herein in accordance with its common use in most of the scientific and standardization literature on environmental soil sampling.

standards on soil sampling and contaminated site characterization as evidenced by a survey of several such documents (e.g. ASTM, 2006; CCME, 1993; DEP, 2001; DOEGN, 2009; EDP, 2011; EPASA, 2005; Gerlach et Nocerino, 2003; IAEA, 2004; ISO, 2002; 2002; Mason, 1992; MEBC, 2001; MEO, 1996; 2011; NSW EPA, 1995; Publications du Québec, 2010; SPIGEC, 1999; Standards Australia, 2005; USEPA, 1989; 2001; 2002; 2011). While most of the latter explicitly require the collection of representative soil samples (e.g. ASTM, 2006; CCME, 1993; DEP, 2001; IAEA, 2004; 2002; ISO, 2002; MEO, 1996; 2011; SPIGEC, 1999; Standards Australia, 2005; USEPA, 2002; 2011), few provide a quantitative definition of representativeness and a rationale for designing representative sampling procedures (e.g. Gerlach et Nocerino, 2003; Mason, 1992). Some guidance and standards provide descriptions of common soil sampling equipment and general justifications for their use (e.g. ASTM, 2006; CCME, 1993; MEO, 1996; ISO, 2002b), but none provide a quantitative assessment of their capacity to produce representative samples. Finally, the sampling techniques most commonly discussed are the discrete single-grab and the composite-grab sampling. While it is generally acknowledged that composite-grab sampling should not be used to collect samples of VOC-contaminated soil (e.g. IAEA, 2004; ISO 2002b; MEO, 1996; 2011; NSW EPA, 1995), other recommendations appear to be more arbitrary. In some cases, composite-grab sampling is suggested as an efficient technique to increase representativeness in cases of heterogeneous soil contamination, especially when the objective is to determine the mean concentration of a soil unit (CCME, 1993; MEO, 1996; 2011; USEPA, 2001). In other cases, it is recommended that composite-grab sampling should be used in cases of more homogeneous soil contamination (MEBC, 2001; MDDEP, 2003; SPIGEC, 1999) or that its use should be limited to that of a screening tool as it can lead to large data uncertainty (DEP, 2001; Standards Australia, 2005; USEPA, 1989). These apparent contradictions are difficult to resolve since no sampling standard or guidance formally addresses the representativeness of grab samples or other types of soil samples.

In the literature pertaining to the Theory of sampling of discrete materials, also known as Gy's Sampling Theory and Practice (STP) (see section 4.1.1), grab sampling is considered to be a form of nonprobabilistic sampling, performed without consideration for STP principles,

which involves taking material from the most accessible parts of the lot (i.e. trench wall, top of a soil pile or laboratory sample bottle) and thereby selecting a few increments based on the judgment of the operator (Gerlach et Nocerino, 2003; Gy, 2004a; Pitard, 1993). Per STP principles, these characteristics would make grab sampling an incorrect form of sampling, prone to severe sampling errors, and that could lead to large biases and uncertainty (Gerlach et Nocerino, 2003; Mason, 1992; Pitard, 1993).

Inconsistencies exist between environmental soil sampling practice, which is largely based upon grab sampling as evidenced by the surveyed standards and guidance, and theoretical sampling principles. These remain because STP, which has been developed and largely applied in mining science and engineering, has yet to be formally and extensively applied in the context of environmental site assessment.

4.1.1 A review of STP principles applied to environmental soil sampling

Environmental soil sampling involves defining: 1) the target population and domains to be sampled, e.g. the contaminated site or zone, 2) the sampling plan, i.e. the number and location of sampling units constituting the sample on which statistical estimates will be made, and 3) the sampling unit itself.

The definition of a sampling unit is seldom addressed in site assessment. In several sciences, a sampling unit exists for measurement purposes as a single fundamental, logical, and precisely defined element, e.g. a person, or a group of more than one such elements, e.g. a household. However, these concepts of sampling unit do not exist in soil sampling science (Myers, 1997).

Soil is an aggregate of liquids, gases, and heterogeneous particulate matter, ranging in size from several centimeters to less than a micron. Contaminants can partition among the three soil phases and be unevenly distributed among the various sizes and types of solid particles. Therefore, a representative soil sampling unit must be defined as a volumetric aggregate

made of an equiprobable selection of each of these heterogeneous elements, a concept also known as representative sample support (Myers, 1997). The difficulty in defining a correct sample unit lies in the selection of its constitutive elements, a process involving the physical delineation and extraction of heterogeneous soil material in bulk. The size of the soil sampling unit is commonly acknowledged as a fundamental parameter controlling the variability of measurements, e.g. contaminant concentrations (Myers, 1997). Furthermore, because soil is intrinsically heterogeneous, a characteristic giving rise to sampling errors, the definition of the size of a soil sampling unit should acknowledge and minimize those errors. Gy's STP defines the Total Sampling Error (TSE) caused by particulate material heterogeneity as follows (Gerlach et Nocerino, 2003; Gy, 1996; 2004a; 2004b; 2004c; Minkkinen, 2004; Myers, 1997; Petersen, Minkkinen et Esbensen, 2005; Pitard, 1993):

$$\text{TSE} = \text{FSE} + \text{GSE} + \text{CE}_2 + \text{CE}_3 + \text{ME} + \text{PE} \quad (4.1)$$

where

TSE	=	Total Sampling Error
FSE	=	Fundamental Sampling Error
GSE	=	Grouping and Segregation Error
CE ₂	=	Long-range Heterogeneity Fluctuation Error
CE ₃	=	Periodic Heterogeneity Fluctuation Error
ME	=	Materialization Error
PE	=	Preparation Error

Since this study was mainly concerned with sampling errors arising at the soil sampling unit scale, the CE₂ and CE₃ terms of Equation (4.1) will not be discussed further since they represent errors associated with spatial and temporal heterogeneity fluctuations encountered at that scale. The reader should refer to the works cited above for a complete definition of all terms in Equation (4.1). Finally, the Total Analytical Error (TAE) is added to the TSE to obtain the Global Estimation Error (GEE).

These sampling errors will affect sampling representativeness, r^2 , which is defined as the sum of the accuracy, or the square of the relative bias, m^2 , and the reproducibility, or variance, s^2 . A representative soil unit is characterized by (Gy, 2004a):

$$r^2(\text{TSE}) = m^2(\text{TSE}) + s^2(\text{TSE}) \leq r_o^2 \quad (4.2)$$

where r_o^2 is a fixed allowable representativeness.

Moreover, at the soil unit scale,

$$s^2(\text{TSE}) = s^2(\text{FSE}) + s^2(\text{GSE}) + s^2(\text{ME}) + s^2(\text{PE}) \quad (4.3)$$

A brief description of the terms in Equation (4.3) follows.

The FSE is caused by the constitution heterogeneity of the soil (Gerlach et Nocerino, 2003; Gy, 1996; Pitard, 1993), such that:

$$s^2(\text{FSE}) = \left(\frac{1}{M_s} - \frac{1}{M_L} \right) clfgd_N^3 \quad (4.4)$$

where

M_s	=	sample mass (g)
M_L	=	mass of the lot (g)
c	=	mineralogical factor (g/cm^3) = $\frac{\rho_A}{a_L}$ if $a_L < 0.1$ (Pitard, 1993)
ρ_A	=	analyte density (g/cm^3)
a_L	=	analyte content in the lot (dimensionless)
l	=	liberation factor (dimensionless)
	=	$\left(\frac{d_l}{d_N} \right)^b$ or $\frac{a_{max} - a_L}{1 - a_L}$ (Pitard, 1993)
d_l	=	analyte particle liberation diameter (cm)
d_N	=	nominal particle size at 95% passing (cm)
a_{max}	=	analyte content in the coarsest fragments of the lot (dimensionless)

f = particle shape factor (dimensionless)
 g = granulometric factor (dimensionless)

For either of its definitions, the liberation factor in particular is difficult to measure in contaminated soil and it is generally given a conservative value of 1 (Gerlach et Nocerino, 2003; Gustavsson, Luthbom et Lagerkvist, 2006), which implies that the contaminant is completely liberated from the soil matrix.

From Equation (4.4),

$$M_s \approx \frac{clfgd_N^3}{s^2(FSE)} \text{ if } M_L \gg M_s \quad (4.5)$$

It is straightforward from Equation (4.5) that sample mass is directly proportional to all other heterogeneity factors, which implies that to comply with a fixed allowable $s^2(FSE)$, M_s must be increased in proportion to soil heterogeneity.

The GSE is caused mainly by the effects of gravity on soil particles, which continually segregate and group particles according to their density. The GSE can be reduced by taking several increments from the lot in order to constitute each soil sample. Moreover, $s^2(GSE)$ can be estimated by

$$s^2(GSE) \approx \frac{s^2(FSE)}{N} \quad (4.6)$$

where N is the number of increments (i.e. soil sampling units). Pitard (1993) suggests that $N = 25$ to 30 to make $s^2(GSE)$ negligible with respect to $s^2(FSE)$.

The ME results from an incorrect delineation of increments and the use of inappropriate sampling tools (Gerlach et Nocerino, 2003; Gy, 1996; Pitard, 1993). The ME is cancelled by correct probabilistic sampling at the soil unit scale, which is performed by delineating

increments (i.e. soil units) to ensure that each soil element in the lot has an equal probability of being selected during sample extraction.

Finally, PE are generated by cross-contamination from sampling tools, alteration due to inadequate preparation, storage or transportation procedures (e.g. material loss or removal, oxidation, volatilization), unintentional mistakes and fraud (Gerlach et Nocerino, 2003; Gy, 1996; Myers, 1997; Pitard, 1993). Therefore, by definition, PE can be cancelled by diligent and careful QA/QC procedures and practice.

Researchers have investigated the variance in contaminant concentrations in relation to soil sample size (Lamé et Defize, 1993) or have used the STP to compared $s^2(\text{TAE})$ measurements on contaminated soil samples with calculated $s^2(\text{FSE})$ values (Gustavsson, Luthbom et Lagerkvist, 2006). Others have focused on using the STP for soil sampling guidance (Gerlach et Nocerino, 2003) or the classification of soil splitting apparatuses according to the control they provide over sampling errors (Gerlach et al., 2002).

Nevertheless, there is a need to bridge the gap between theory and practice in environmental soil sampling and improve the latter by using the STP to investigate sampling errors and their influence on representativeness at every stage of the sampling process, from the field to the laboratory.

4.1.2 Objectives of the study

This paper reports the qualitative and quantitative use of the STP for the development and analysis of contaminated soil sampling procedures. It presents an experimental study consisting in a comparison between an STP-based soil sampling procedure and a procedure based on grab sampling, a form of convenient non-probabilistic sampling commonly used in earth sciences and environmental site assessment. The sources of representativeness in field and laboratory sampling were calculated and measured for both sampling procedures.

Discrepancies between the theoretical representativeness calculated from the STP and the experimentally measured representativeness were identified and discussed.

4.2 Materials and methods

4.2.1 Study site and sampling locations

Field sampling was conducted in an area 28 m x 46 m of an urban brownfield in downtown Montreal (Canada). This specific area was chosen because it was the only unconstructed part of the site. The site itself was selected because of its large heterogeneity at the site scale and the soil unit scale (Boudreault et al., 2010; Qualitas, 2010; Quéformat, 2004b). Generally, because of their significant physical and chemical heterogeneity, urban brownfields present particularly difficult challenges in environmental site assessment. Thus, they are well suited for highlighting inherent difficulties in sampling discrete materials for analytical purposes.

Site geology consisted in a surface layer of contaminated heterogeneous historical fill, 2-3 m thick and overlaying an uncontaminated till deposit. The water table was located at a depth of 2 to 3 meters, thus underneath the contaminated fill. The historical fill originated from several backfilling of domestic wastes, incineration residues and demolition rubble due to successive phases of residential, commercial and industrial uses of the site over the past 150 years. Previous studies had shown that the fill was mainly contaminated with metals (e.g. Cu, Pb, Zn) and several PAHs (e.g. chrysene, phenanthrene, benzo(a)pyrene, benzo(a)anthracene, benzo(b,j,k)fluoranthene, indeno(1,2,3-cd)pyrene) above provincial regulatory thresholds (Qualitas, 2010; Quéformat, 2004). The fill also contained various waste materials (e.g. bricks, concrete debris, clinker, ash) (Boudreault et al., 2010). The historic fill was determined as the main contaminated medium since the contaminants were found in or associated with the solid phase and were not mobile (Qualitas, 2010; Quéformat, 2004). The fill was therefore chosen as the focus for studying environmental soil sampling.

For this study, a systematic random sampling plan was used, which consisted of 6 sampling stations regularly spaced according to a 25 m x 25 m grid. At each sampling station, two sampling depths were positioned in the fill. Samples were taken at each depth according to two distinct sampling procedures, an alternative sampling procedure (ASP) based on the STP and a grab sampling procedure (GSP) commonly used in environmental site assessment. Both procedures are summarized in Figure 4.1 and detailed in the following sections.

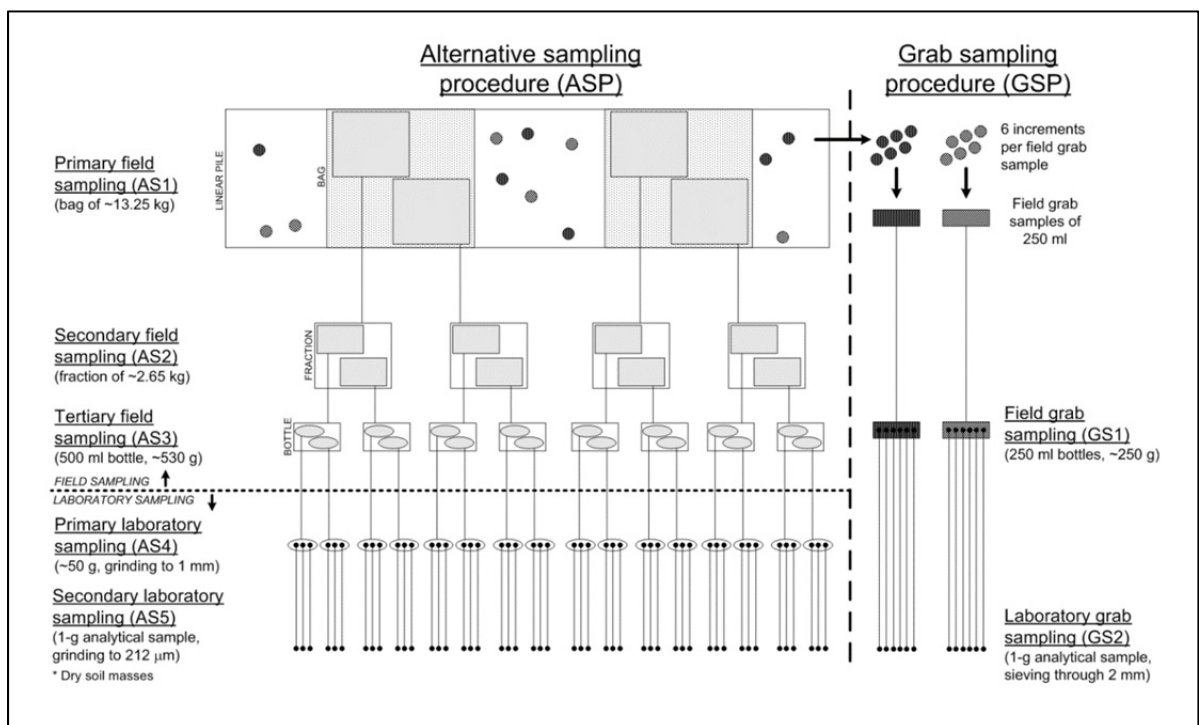


Figure 4.1 Schematization of the 5 stages of the ASP and the 2 stages of the GSP

4.2.2 Alternative sampling procedure (ASP)

4.2.2.1 ASP Field sampling – AS1 to AS3 stages

In AS1, a 2 m x 1 m trench was first excavated at each sampling location. At the desired sampling depths, soil material was excavated, using a mechanical shovel, in 100-mm thick

slices over a depth of 0.5 m and laid out in linear piles similar to homogenization stockpiles used in the mining industry (see Figure 4.2).

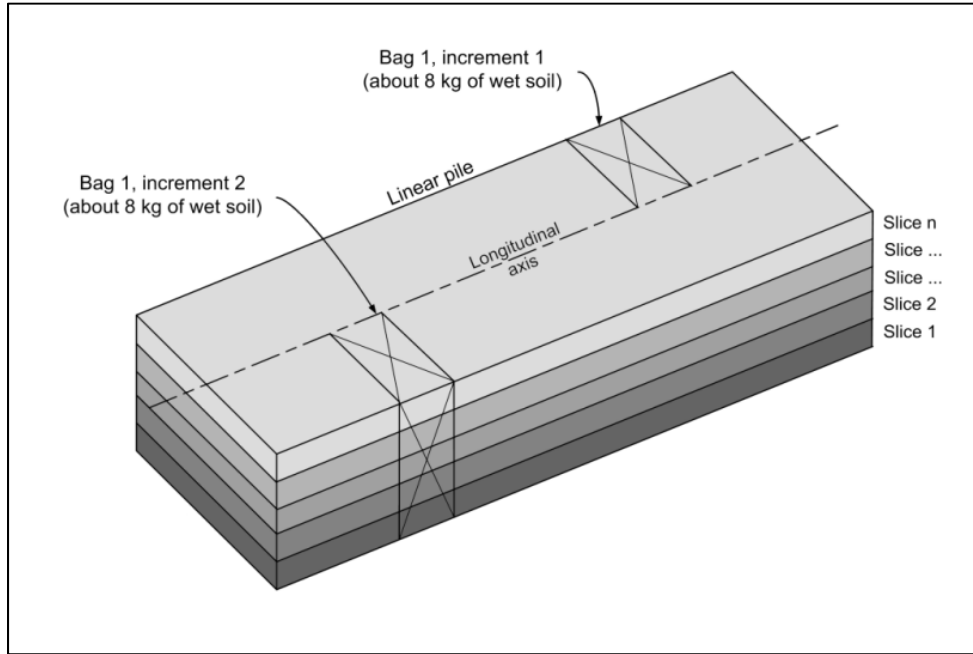


Figure 4.2 Linear pile and primary increments

To limit the size of primary samples to a portable mass, two increments were randomly positioned along the longitudinal axis of each pile. To control and reduce $s^2(\text{ME})$, each increment was delineated perpendicular to the longitudinal axis by the full height of the pile and a width at least thrice the diameter of the largest particle (Figure 4.2). Both increments were extracted using a flat-bottomed trowel and put in the same polyethylene bag to constitute a primary field sample of about 13.25 kg of dry soil (AS1 stage) made of 10 sub-increments on average (i.e. 5 slices on average \times 2 increments) (Figure 4.2). Therefore, in AS1, $s^2(\text{GSE}) \approx s^2(\text{FSE})/10$. A duplicate primary field sample was also taken from each pile for determining reproducibility at AS1.

The mass of each primary field sample was reduced fivefold in two stages of fractional shovelling (Pitard, 1993), namely AS2 and AS3. This technique was used to control $s^2(\text{GSE})$

by allowing the constitution of subsamples from approximately 25 increments. Hence, in AS2 and AS3, $s^2(\text{GSE}) \approx s^2(\text{FSE})/25$. Fractional shovelling was performed with a small aluminum trowel on an aluminum table. From AS1 to AS3, four tertiary field samples were obtained per primary field sample, for a total 96 tertiary field samples for the 12 sampling locations.

4.2.2.2 ASP Laboratory sampling – AS4 and AS5 stages

In the laboratory, the tertiary field samples were dried at a temperature of 60°C. This drying temperature was used to avoid potential losses of volatile metal species which can occur at drying temperatures above 100°C (Gustavsson, Luthom et Lagerkvist, 2006). Then, each sample was sieved at 10 mm on a plastic sieve. The laboratory subsampling procedure was developed using the nomograph technique (Pitard, 1993). In AS4, grinding was performed on the sieved tertiary field samples using a planetary mono mill to a nominal particle size to 1 mm. The ground samples were divided into 8 fractions with a rotary sectorial splitter with a splitting head made of anodic aluminum. In AS5, two primary laboratory subsamples of approximately 50 g were then randomly selected and ground separately to a nominal particle size of 0.212 mm. Each ground primary laboratory subsample was then divided using the rotary sectorial splitter into 1-g secondary laboratory subsamples. Rotary sectorial splitting was used to control $s^2(\text{GSE})$ and $s^2(\text{ME})$ through the division of the whole lot into a very large number of very small increments (Gerlach et al., 2002; Petersen, Dahl et Esbensen, 2004). Hence, in AS4 and AS5, $s^2(\text{GSE})$ and $s^2(\text{ME})$ were considered negligible with respect to $s^2(\text{FSE})$.

At the end of the ASP, 576 1-g laboratory samples were obtained for the 12 sampling locations.

4.2.2.3 Grab sampling procedure (GSP) - GS1 and GS2 stages

In GS1, the exposed surface of the linear piles was grab-sampled using a 300-mL glass jar. Each primary field grab sample was made from six grabbed increments for an approximate mass of dry soil of 250 g. In GS2, two primary field grab samples were taken per sampling location. These 24 primary field grab samples were transported to the laboratory, dried at a temperature of 60°C, and sieved at 2 mm using a plastic sieve. Then, six 1-g secondary grab samples were obtained from the surface of each sieved primary field grab sample using a plastic spatula.

The GSP was designed according to conventional sampling practice in environmental site assessment. The sampling technique, the tools used and the 2-mm sieving were used to reproduce the soil sampling practice resulting from conventional sampling guidance (e.g. MDDEP, 2003). The GSP did not allow control over $s^2(\text{ME})$, since only the exposed surface of the lot was sampled and incorrectly designed sampling tools were used (i.e. jar and spatula) (Pitard, 1993). Therefore, increment delineation and extraction were incorrect as each soil element in the lot did not have an equal probability of being selected. Moreover, in GS1, $s^2(\text{GSE})$ was reduced with respect to $s^2(\text{FSE})$ by taking 6 increments, while in GS2, grabbing a single increment made $s^2(\text{GSE})$ equal to $s^2(\text{FSE})$.

At the end of the GSP, 144 1-g laboratory samples were obtained for the 12 sampling locations.

4.2.2.4 Chemical analysis and analytical error

All 1-g laboratory samples were digested with nitric acid and hydrochloric acid. The digested samples were filtered at 1 μm and the filtrates were analyzed by inductively coupled plasma optical emission spectroscopy (ICP-OES) for cadmium (Cd), cobalt (Co), chromium (Cr), copper (Cu), nickel (Ni), manganese (Mn), lead (Pb) and zinc (Zn). All metal concentrations measured in the 720 1-g analytical samples were larger than these detection limits.

Measurement of $s^2(\text{TAE})$ was performed by analyzing the aforementioned metal concentrations in 4 digested/filtered samples, each divided into 10 aliquots. The concentrations in the samples ranged from approximately 5 mg/kg to 1500 mg/kg.

4.2.2.5 Preparation error and quality control

During both ASP and GSP, care was taken to avoid cross-contamination and sample alteration from the sampling equipment. All tools and surfaces in contact with the samples during all sampling stages were made of either plastic (polyethylene, polypropylene) or aluminum. The grinding bowl and beads were made of agate. Every piece of equipment was thoroughly washed between each sampling and subsampling procedure to avoid cross-contaminating the samples. All samples and subsamples were stored in closed bottles at 4°C. All glassware was washed three times with diluted nitric acid (10% v/v) and distilled water prior to first use and between each sample. As suggested by Gustavsson, Luthbom et Lagerkvist (2006), soil samples were dried at low temperature (60°C). Certified materials (SCP science) were used for controlling the analytical procedure. These procedures were followed to minimize $s^2(\text{PE})$ according to Gy (2004a) and, since they were identical for the ASP and the GSP, $s^2(\text{PE})$ was assumed to have the same magnitude for both sampling procedures. Therefore, $s^2(\text{PE})$ did not influence the comparative analysis of the sampling variances of both procedures.

4.2.2.6 Calculation of theoretical and experimental sampling variances

Sampling representativeness was assessed through theoretical and experimental reproducibility, or relative variance. However, experimental bias could not be measured since the true concentrations of the lots were unknown. Theoretical sampling variance, $s^2(\text{THEO})$, was first calculated for each metal and each sampling stage from the quantitative terms of

Equation (4.3), namely $s^2(\text{FSE})$ and $s^2(\text{GSE})$. According to Gerlach et Nocerino (2003), the following estimates were used in the calculation of $s^2(\text{FSE})$ values: $l = 1$; $f = 0.5$; $g = 0.25$. Moreover, the mineralogical factor, c , was calculated using the median concentration of each metal for all 576 and 144 analytical samples of the ASP and GSP respectively.

Experimental variance was calculated for each metal at each sampling stage from a fully nested ANOVA following an approach similar to Ramsey (1998). The ANOVA was performed with Minitab 15 on metal concentrations from the 576 laboratory samples and the 144 laboratory samples obtained from the ASP and the GSP respectively. Experimental relative variances, $s^2(\text{EXP})$, at a given sampling stage were calculated by dividing the variance by the square of the average metal concentration at that stage and subtracting $s^2(\text{TAE})$.

4.2.2.7 Statistical data analysis

The nonparametric Kruskal-Wallis test was used to determine if the sampling procedure had an effect on the measured metal concentrations. Concentrations were compared for each metal and sampling location. Moreover, the nonparametric Levene's test was used to assess whether the total relative sampling variance was different between the sampling procedures. These tests were performed with Minitab 15 at a confidence level of 95%.

4.3 Results and discussion

4.3.1 Median metal concentrations

The median metal concentrations were calculated for all sampling stations for both sampling procedures as reported in Table 4.1. The Kruskal-Wallis test showed that in 68% of all comparisons, a significant difference in median concentration ($p < 0.05$) existed between the ASP and GSP. The median concentrations of ASP samples were, on average, 17% greater than those measured in GSP samples. A detailed analysis indicated that there was no

apparent trend showing that significant differences in median concentrations could be attributed to specific metals or sampling locations (not shown).

This relative bias in median concentrations between the sampling procedures was most probably the result of sample grinding during AS4 and AS5, which may have liberated metals from metal-bearing waste particles in the soil (e.g. clinker particles). An absolute bias for each sampling procedure could not be determined because the real metal concentrations were unknown.

4.3.2 Theoretical sampling variance

Table 4.2 presents the calculated $s^2(\text{THEO})$ values for each metal using the parameters provided in Table 4.1.

The $s^2(\text{THEO})$ values increased in direct proportion to the mineralogical factor, independently of sampling stage or sampling procedure, as shown by Equation (4.4). In other words, a smaller concentration implied a larger $s^2(\text{THEO})$ because the probability of selecting contaminant particles (or contaminated soil particles) by extracting a given soil mass decreases with concentration. Ranking metals in order of decreasing $s^2(\text{THEO})$ and mineralogical factor gave:

$$\text{Co} > \text{Cd} > \text{Ni} \cong \text{Cr} > \text{Cu} > \text{Zn} > \text{Pb} > \text{Mn}.$$

For all metals, field sampling stages of the ASP (AS1 to AS3) contributed to a much larger portion of $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$ than the laboratory sampling stages (AS4 and AS5), namely 98.6% and 1.4% respectively on average. The larger proportion of $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$ produced by field sampling was mainly caused by the fact that mass reduction was performed without a concurrent decrease of d_N (see Equation (4.4)). Therefore, since mass decreased from a lot of approximately 10^6 g to a sample mass of 530 g in AS3, and d_N remained constant at 1 cm, the proportion of $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$ increased from an average of 4.1% (AS1) to 78.7% (AS3). In the laboratory sampling stages (AS4 and AS5), each stage contributed very small amounts to $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$, since d_N was reduced by grinding before mass reduction was performed.

Additionally, 96% of $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$ was caused by $s^2(\text{FSE})$ while only 4% was attributable to $s^2(\text{GSE})$ because of the large number of increments taken at each sampling stage.

In the GSP, again for all metals, nearly all of $s^2(\text{THEO})_{\text{GSP}}$ was produced by laboratory sampling (GS2), with an average of 99.8% compared to an average of 0.2% for field sampling (GS1). The large $s^2(\text{FSE})$ of GS2 was the result of reducing sample mass to 1 g, while keeping d_N constant at 1 cm. Moreover, since $s^2(\text{GSE})$ was equivalent to $s^2(\text{FSE})$, because only one increment was extracted in GS2, each source of error contributed 50% to $s^2(\text{THEO})_{\text{GSP}}$.

Table 4.1 Calculation of the mineralogical factor for each metal for median concentrations

Metal	ρ_A (g/cm³)	Sampling procedure	Median concentration (mg/kg)	a_L	c (g/cm³)
Cd	8.69	ASP	11	1.1×10^{-5}	789 985
		GSP	10	1.0×10^{-5}	868 985
Co	8.86	ASP	8.8	8.8×10^{-6}	1 006 803
		GSP	8.4	8.4×10^{-6}	1 054 747
Cr	7.19	ASP	21	2.1×10^{-5}	342 369
		GSP	18	1.8×10^{-5}	399 432
Cu	8.92	ASP	68	6.8×10^{-5}	131 161
		GSP	49	4.9×10^{-5}	182 026
Mn	7.43	ASP	470	4.7×10^{-4}	15 796
		GSP	470	4.7×10^{-4}	15 796
Ni	8.91	ASP	25	2.5×10^{-5}	356 385
		GSP	23	2.3×10^{-5}	387 376
Pb	11.3	ASP	390	3.9×10^{-4}	28 954
		GSP	250	2.5×10^{-4}	45 180
Zn	7.14	ASP	230	2.3×10^{-4}	31 032
		GSP	210	2.1×10^{-4}	33 988

For all metals, $s^2(\text{THEO})_{\text{GSP}}$ was approximately 10^3 times larger than $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$, mainly due to the $s^2(\text{FSE})$ and $s^2(\text{GSE})$ of GS2. This indicated that, in theory, the ASP could greatly

improve sampling reproducibility compared to the GSP. When considering the first sampling stage in both ASP and GSP (AS1 and GS1), it was observed that the method of sampling the soil piles had a large influence on the $s^2(\text{FSE})$ and $s^2(\text{GSE})$. The much larger soil mass taken in AS1 and the greater number of increments both contributed to increasing reproducibility with respect to GS1. However, the field sampling stages in the ASP (AS2 and AS3) contributed to a subsequent decrease in sampling reproducibility as explained above. Nevertheless, $s^2(\text{THEO})_{\text{ASP-Field}}$ remained smaller than $s^2(\text{THEO})_{\text{GSP-Field}}$. The $s^2(\text{THEO})$ values of laboratory sampling stages indicate the most fundamental differences between the two sampling procedures. The concurrent use of grinding and mass reduction with rotary sectorial splitting in the ASP greatly improved the control over the FSE and the GSE. Grab sampling 1-g analytical samples from a sampling jar, as performed in GS2, was shown to be inappropriate in controlling these errors.

Table 4.2 Theoretical relative variances $s^2(\text{THEO})$ [$s^2(\text{THEO}) = s^2(\text{FSE}) + s^2(\text{GSE})$]

Sampling stage	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn	Mean	% of total mean
ALTERNATIVE SAMPLING PROCEDURE – ASP										
FIELD SAMPLING										
<i>AS1</i>	8.09	10.3	3.51	1.34	0.162	3.65	0.296	0.318	3.46	4.1%
<i>AS2</i>	31.0	39.5	13.4	5.15	0.620	14.0	1.14	1.22	13.3	15.8%
<i>AS3</i>	155	198	67.2	25.7	3.10	69.9	5.68	6.09	66.3	78.7%
ASP-Field = AS1+AS2 +AS3	194	247	84.1	32.2	3.88	87.6	7.11	7.62	83.0	98.6%
LABORATORY SAMPLING										
<i>AS4</i>	1.79	2.28	0.775	0.297	0.0358	0.807	0.0656	0.0703	0.765	0.9%
<i>AS5</i>	0.922	1.18	0.400	0.153	0.0184	0.416	0.0338	0.0362	0.394	0.5%
ASP-Lab = AS4+AS5	2.71	3.45	1.17	0.450	0.0542	1.22	0.0994	0.107	1.16	1.4%
TOTAL	197	251	85.3	32.7	3.94	88.8	7.21	7.73	84.2	100.0%

GRAB SAMPLING PROCEDURE – GSP										
FIELD SAMPLING - GS1	507	615	233	106	9.21	226	26.3	19.8	218	0.2%
LABORATORY SAMPLING - GS2	216 000	263 000	99 500	45 300	3 930	96 460	11 250	8 460	93 000	99.8%
TOTAL	217 000	263 000	99 700	45 400	3 940	96 680	11 280	8 480	93 200	100.0%

4.3.3 Experimental sampling variance

Table 4.3 presents the experimental relative variances for the ASP and the GSP. These results show that for all metals, the GSP generated a larger total relative variance than the ASP. Levene's test showed that the decrease in variance produced by the ASP was significant for each metal at each sampling location ($p < 0.05$).

Ranking the metals in order of decreasing $s^2(\text{EXP})$ for each sampling procedure yielded:

$\text{Cu} > \text{Zn} > \text{Pb} > \text{Ni} > \text{Cd} > \text{Cr} > \text{Co} > \text{Mn}$ for the ASP and

$\text{Cu} > \text{Pb} > \text{Zn} > \text{Cr} > \text{Ni} > \text{Co} > \text{Cd} > \text{Mn}$ for the GSP.

In both cases, Cu, Zn and Pb had the largest variances. This ranking was not correlated to metal concentration as predicted by theoretical calculations (see section 4.3.2).

The contribution of each sampling stage to the total relative variance is also shown in Table 4.3. First, $s^2(\text{TAE})$ was 1.1% and 0.1% of the total $s^2(\text{EXP})$ for the ASP and the GSP respectively. This confirmed that sampling errors, rather than analytical errors, are the cause of nearly all data variability and loss of reproducibility (Crumbling, Griffith et Powell, 2003; Gustavsson, Luthbom et Lagerkvist, 2006).

The ratios of the relative variances between the two sampling procedures ranged from 2.9 to 15 (Table 4.3). These ratios estimate the increase in reproducibility from the ASP and show that, on average, the ASP ($\text{Total } s^2(\text{EXP})_{\text{avg}} = 1.83 \times 10^{-2}$) resulted in a significant tenfold decrease in sampling variance with respect to the GSP ($\text{Total } s^2(\text{EXP})_{\text{avg}} = 1.90 \times 10^{-1}$).

Table 4.3 Experimental relative variances $s^2(\text{EXP})$

Sampling stage	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Zn	Mean	% of total mean
ALTERNATIVE SAMPLING PROCEDURE – ASP										
FIELD SAMPLING										
<i>AS1</i>	0.00090	0.00075	0.00188	0.00476	0.00087	0.0128	0.00882	0.00288	0.00421	23.0%
<i>AS2</i>	0.00000	0.00024	0.00086	0.00739	0.00017	0.00198	0.00237	0.00141	0.00180	9.8%
<i>AS3</i>	0.00785	0.00172	0.00131	0.0251	0.00060	0.00236	0.0126	0.0230	0.00932	50.9%
AS Field = AS1+AS2+AS3	0.00875	0.00271	0.00405	0.0373	0.00164	0.0172	0.0237	0.0273	0.0153	83.7%
LABORATORY SAMPLING										
<i>AS4</i>	0.00074	0.00018	0.00013	0.00955	0.00006	0.00009	0.00179	0.00033	0.00161	8.8%
<i>AS5</i>	0.00179	0.00060	0.00052	0.00408	0.00034	0.00110	0.00064	0.00038	0.00118	6.5%
AS Lab = AS4+AS5	0.00253	0.00078	0.00065	0.0136	0.00040	0.00119	0.00243	0.00071	0.00279	15.2%
CA	0.00005	0.00025	0.00003	0.00002	0.00077	0.00021	0.00026	0.00001	0.00020	1.1%
TOTAL	0.0113	0.00374	0.00473	0.0509	0.00281	0.0186	0.0264	0.0281	0.0183	100%
GRAB SAMPLING PROCEDURE – GSP										
GS1	0.00261	0.00098	0.0108	0.0189	0.00000	0.00000	0.0259	0.00180	0.00762	4.0%
GS2	0.0422	0.0442	0.0557	0.694	0.0395	0.0539	0.356	0.172	0.182	95.9%
CA	0.00005	0.00025	0.00003	0.00002	0.00077	0.00021	0.00026	0.00001	0.00020	0.1%

TOTAL	0.0449	0.0455	0.0665	0.713	0.0403	0.0541	0.382	0.174	0.190	100%
$\frac{s^2(EXP)_{GSP}}{s^2(EXP)_{ASP}}$	4	13	14	14	19	3	15	6	10	
$\frac{s^2(THEO)_{ASP}}{s^2(EXP)_{ASP}}$	1.7×10^4	7.2×10^4	1.8×10^4	6.4×10^2	1.9×10^3	4.8×10^3	2.8×10^2	2.8×10^2	1.4×10^4	
$\frac{s^2(THEO)_{GSP}}{s^2(EXP)_{GSP}}$	4.8×10^6	5.8×10^6	1.5×10^6	6.4×10^4	1.0×10^5	1.8×10^6	3.0×10^4	4.9×10^4	1.8×10^6	

The $s^2(EXP)_{ASP}$ were, on average, more than 5 times larger for the field sampling stages than for the laboratory sampling stages or 83.7% and 15.2% of the average total $s^2(EXP)_{ASP}$ respectively. On the other hand, the $s^2(EXP)_{GSP}$ were, on average, nearly 24 times smaller for the field sampling stages than for the laboratory sampling stages or 4.01% and 95.9% of the average total $s^2(EXP)_{GSP}$ respectively.

Comparing AS1 with GS1, both being sampling stages performed on the linear soil piles (see Figure 4.1), it appeared that AS1 was, on average, more reproducible than GS1 by a factor of approximately 2. The mass reduction stages, AS2 and AS3, introduced increasingly larger variability in ASP field sampling, which explained why $s^2(EXP)_{ASP-Field}$ exceeded $s^2(EXP)_{GSP-Field}$ (see Table 4.3). As discussed previously, the absence of control over d_N (e.g. by grinding) during AS2 and AS3 explained the increase in variance for these stages.

The comparison of laboratory sampling stages for both procedures yielded different results as ASP-Lab stages were more than 65 times more reproducible, on average, than GS2 (Table 4.3). As aforementioned, this indicated that the use of grinding during AS4 and AS5 provided efficient control over d_N in order to minimize $s^2(EXP)$, while this was impossible in GS2. Therefore, the main discrepancy in reproducibility between the ASP and the GSP was the result of laboratory sampling.

4.3.4 Comparison between theoretical and experimental sampling variances

Generally, the analysis of the sampling procedures based on theoretical calculations correctly identified the main reproducibility losses in both sampling procedures as confirmed by experimental results (i.e. AS2 and AS3 for the ASP, GS2 for the GSP). The theoretical investigation also correctly concluded that the GSP was less reproducible than the ASP. However, theoretical calculations were not able to correctly reproduce the ranking of $s^2(\text{EXP})$.

When the magnitude of corresponding $s^2(\text{THEO})$ and $s^2(\text{EXP})$ values were compared, very large discrepancies were shown to exist between theory and experiment. As shown in Table 4.3, $s^2(\text{THEO})/s^2(\text{EXP})$ range from 2 to 4 orders of magnitude for the ASP and from 4 to 6, for the GSP respectively. Moreover, the average $s^2(\text{THEO})_{\text{GSP}}/s^2(\text{THEO})_{\text{ASP}}$ was 2 orders of magnitude larger than the average $s^2(\text{EXP})_{\text{GSP}}/s^2(\text{EXP})_{\text{ASP}}$. Therefore, the theory considerably overestimated the sampling variances associated with both procedures, but also the difference in reproducibility between them.

This significant disagreement between theoretical calculations and experimental measurements resides in the hypotheses made for the calculation of $s^2(\text{FSE})$, primarily in the estimation of the liberation factor (l). In contaminated soils, the mineralogical factor (c) can be very large because of typically very small values of a_L (Table 4.1). Since it has been suggested that $l = 1$ for environmental samples (Gerlach et Nocerino, 2003), for lack of other available criteria, $s^2(\text{FSE})$ consequently becomes very large. This assumption also leads to very large and impractical sample masses (M_s) for a fixed $s^2(\text{FSE})$ (Equation (4.5)). Using $l = 1$ implies that theoretical calculations are made under the assumption that the analyte is completely liberated from the soil matrix.

On the other hand, the definitions of l found in Pitard (1993) (see Equation (4.4)) can be used to calculate its value. Both imply a mineral-like analyte (i.e. grains in rock matrix, individual mineral particles), which may not be representative of the state of the analyte in

contaminated soil. Nevertheless, the definition of l based on the liberation diameter, d_l , is examined herein for the case of Pb. In soil contaminated with metals, d_l could represent the diameter of analyte particles, and as such it was estimated as 1×10^{-4} cm from Pb precipitates observed with scanning electron microscopy in contaminated soils (Dubé et Galvez-Cloutier, 1998; Duchesne et Mercier, 2003). It is important to note that such data is scarce and not readily available for a wide variety of contaminated soils, wastes and contaminants, and would have to be experimentally determined on a case-by-case basis. The b -exponent of the liberation parameter was first assumed as 0.5 as in Pitard (1993). For the ASP, it was assumed that d_l would not be modified by grinding. A second calculation of $s^2(\text{THEO})$ for Pb was performed for both sampling procedures and the results are presented in Table 4.4.

The ratio between $s^2(\text{THEO})$ and $s^2(\text{EXP})$ ranged from 0.3 to 4.8 for the ASP stages and from 10.2 to 316 for the GSP stages. These result indicated a closer agreement between theory and experiment, compared to using $l = 1$. However, except for AS1, the values of $s^2(\text{THEO})$ were still larger than $s^2(\text{EXP})$, which is theoretically impossible since, once $s^2(\text{GSE})$ is factored out from $s^2(\text{THEO})$ and $s^2(\text{EXP})$, $s^2(\text{FSE})$ must be the minimum irreducible variance for given M_S and d_N .

The value of 0.5 assigned to the b -exponent in the first recalculation of $s^2(\text{THEO})$ for Pb can be regarded as an arbitrary value which has unfortunately been generalized in the literature and in sampling practice (Francois-Bongarcon et Gy, 2002). In fact, as stated by Gy (1996) and Francois-Bongarcon et Gy (2002), Gy first suggested $l = \left(\frac{d_l}{d_N}\right)^{0.5}$ as a rule of thumb. It was Gy's original intention that l or the b -exponent be experimentally calibrated (François-Bongarçon et Gy, 2002) and Gy even stated later that the use of $l = \left(\frac{d_l}{d_N}\right)^{0.5}$ should simply be avoided (Gy, 2004b). For gold ores, it has been showed that $b = 1.5$ (François-Bongarçon et Gy, 2002; Gy, 1996). Values of 1 and 1.5 have been used for b in sample calculations, or were suggested as estimates, when experimental calibration was not available (Francois-Bongarcon et Gy, 2002; Minnitt, Rice et Spangenberg, 2007). Therefore, $s^2(\text{THEO})$ was

recalculated a second time using an estimated $b = 1$ and the agreement between $s^2(\text{THEO})$ and $s^2(\text{EXP})$ was largely improved (Table 4.4). For the ASP, $s^2(\text{THEO}) < s^2(\text{EXP})$ for all stages, while for the GSP, $s^2(\text{THEO})$ remained slightly larger than $s^2(\text{EXP})$.

Despite this improvement, it should be emphasized these b -values used herein remain arbitrary estimates and that its experimental calibration should be investigated for contaminated soil.

Table 4.4 Comparison between theoretical and experimental relative variance for Pb

Sampling stage	d_N (cm)	l ($b=0.5$)	l ($b=1$)	$s^2(\text{THEO})$ ($b=0.5$)	$s^2(\text{THEO})$ ($b=1$)	$s^2(\text{EXP})$	Ratio ($b=0.5$)	Ratio ($b=1$)
AS1	1	0,01	0,0001	0,0030	3×10^{-5}	0,0088	0,336	0,0034
AS2	1	0,01	0,0001	0,0114	0,0001	0,0024	4,79	0,0480
AS3	1	0,01	0,0001	0,0568	0,0006	0,0126	4,53	0,0453
AS4	0,1	0,03	0,0010	0,0021	0,0001	0,0018	1,16	0,0366
AS5	0,0212	0,07	0,0047	0,0023	0,0002	0,0006	3,63	0,249
Total				0,0755	0,0009	0,0262	2,89	0,0358
GS1	1	0,01	0,0001	0,263	0,0026	0,0259	10,2	0,102
GS2	1	0,01	0,0001	113	1,12	0,356	316	3,16
Total				113	1,12	0,382	295	2,95

4.3.5 Sampling representativeness and regulatory threshold values

As mentioned previously, the ASP increased data reproducibility by an average factor of 10 compared to the GSP. Ultimately, this improvement in data representativeness can be translated into a greater certainty about the decision of assigning a contamination level to a given site. By considering a Gaussian distribution of sampling errors (i.e. as an hypothesis for their real distribution at a given sampling location) and the total relative variance of a given sampling procedure, it is possible to obtain the distribution of observable concentrations in a soil sample for that sampling procedure. This is shown in Figure 4.3 for two sampling procedures, identified as Methods A (such as ASP) and B (such as GSP). If bias is neglected in the analysis, the density function of the variable (i.e. observable concentrations) is centered on the same value for both methods.

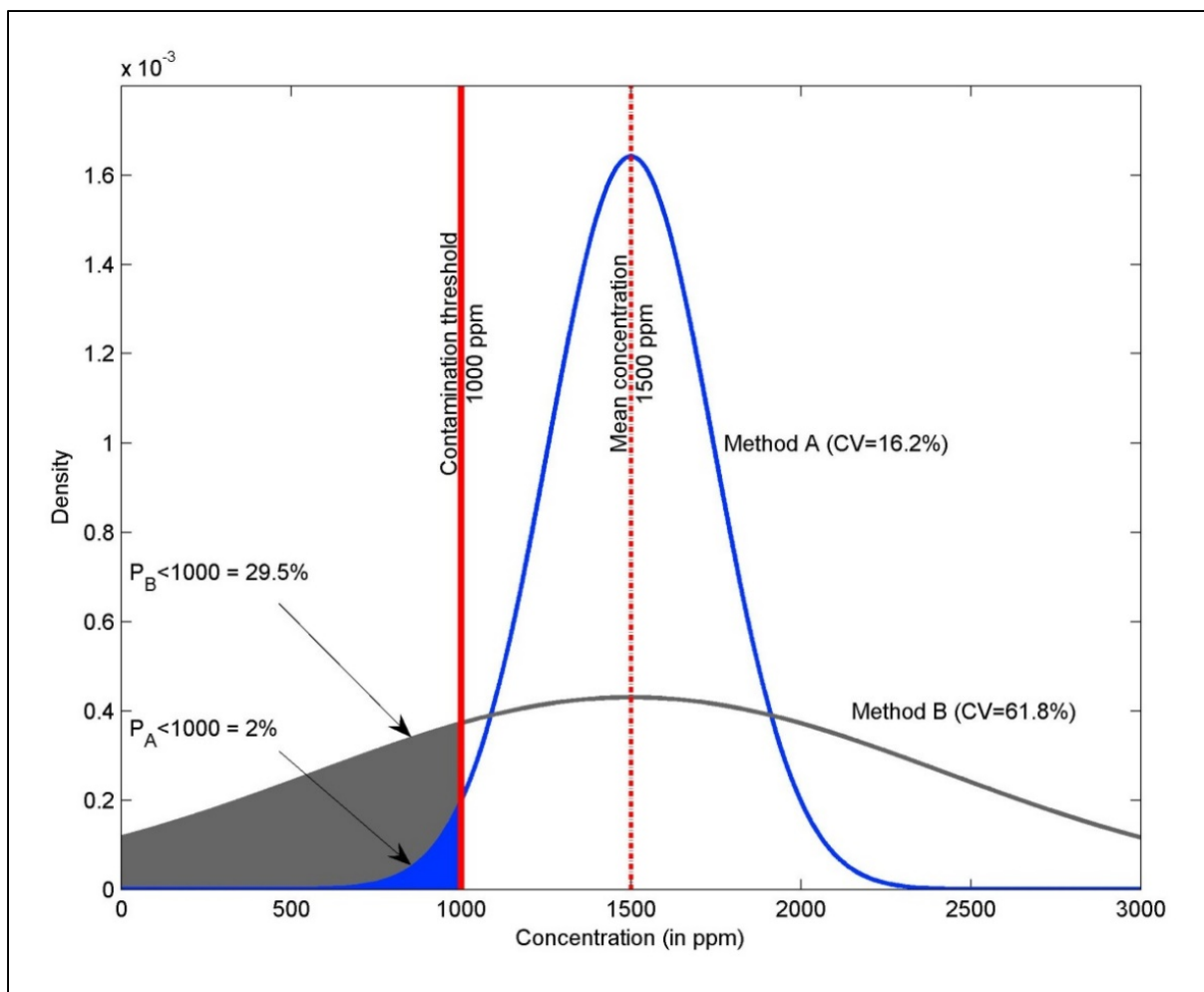


Figure 4.3 Probability of making soil classification errors based on the representativeness of the sampling procedure

For instance, let us assume an average measured Pb concentration of 1500 mg/kg and assign total relative variances of 0.0264 (CV = 16.2%) and 0.3822 (CV = 61.8%) to methods A and B based on the results obtained herein for the ASP and GSP respectively. Let us also consider a regulatory threshold value of 1000 mg/kg for Pb (e.g. Publications du Québec, 2010). On the basis of these assumptions, Method A (ASP) leads to a 2.0% probability of erroneously classifying the soil as having a Pb concentration greater than the threshold value. However, using Method B (GSP), this probability of making a classification error significantly rises to 29.5%.

4.4 Conclusions

Gy's Sampling Theory and Practice (STP) was used to analyze the reproducibility of two soil sampling procedures, namely a procedure based on grab sampling (GSP), commonly used in environmental soil sampling, and an alternative procedure (ASP) developed from STP principles. Sampling reproducibility was determined by theoretical calculations and experimental measurement of relative variances in contaminant concentrations at each stage of both sampling procedures.

In relative terms, theoretical calculations and experimental measurements were in agreement on the following:

- ASP was more reproducible than the GSP, namely by a factor of 10^3 according to theory or 10, according to experiment;
- loss of reproducibility (i.e. larger relative variances) occurred mostly during field sampling in the ASP and during laboratory sampling in the GSP;
- loss of experimental reproducibility was always associated with significant subsample mass reduction without control over d_N (84% for AS1-AS3 in ASP and 95% for GS2 in GSP). Theoretical calculations confirmed these observations with 98.6% and 99.5% of reproducibility losses occurring in the same sampling stages.

However, when comparing absolute values of $s^2(\text{THEO})$ and $s^2(\text{EXP})$, large discrepancies were observed for all sampling stages of both procedures. These discrepancies were in the order of 10^4 and 10^6 for the ASP and the GSP respectively. They were likely caused by using $l = 1$ as an estimation for the liberation factor. The influence of this estimate was investigated for Pb. When using a calculated value of l based on mineralogical data on Pb-contaminated soil, $s^2(\text{THEO})$ was brought in much closer agreement with experimental observations. Discrepancies were decreased to < 10 for the ASP and to 10^2 for the GSP. Moreover, it was also shown that the b -exponent also had a large influence on $s^2(\text{THEO})$. Increasing the estimate of b from 0.5 and 1 largely improved the agreement between theory

and experiment. However, these values being arbitrary estimates for b , it is highly recommended that the experimental calibration of the b -exponent, and the liberation factor, should be investigated before Equation (4.4) can be used to analyze and design representative soil sampling procedures.

This study has demonstrated that the quantification and control of sampling representativeness, performed herein through an analysis of sampling reproducibility, a component of representativeness, is fundamental for the control of site assessment data quality. Since 99% of representativeness losses originate from sampling errors, it is of the greatest importance that the quality of a sampling procedure be controlled through a careful consideration of the theoretical influence of its constitutive elements (e.g. sampling tools, mass and size reduction techniques) on data and decision-making uncertainty.

Acknowledgments

The authors acknowledge the financial support of the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and are also appreciative of the financial and in-kind support of Groupe Qualitas during field work.

CHAPITRE 5

QUANTIFICATION AND MINIMIZATION OF UNCERTAINTY BY GEOSTATISTICAL SIMULATIONS DURING THE CHARACTERIZATION OF CONTAMINATED SITES: 3-D APPROACH TO A MULTI-ELEMENT CONTAMINATION

Jean-Philippe Boudreault^a, Jean-Sébastien Dubé^a, Denis Marcotte^b

^aCanada Research Chair in Contaminated Site Characterization, Department of Construction Engineering, École de technologie supérieure,

1100 Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, Canada, H3C 1K3

^bDepartment of Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique,
2900 Boulevard Edouard-Montpetit, Montréal, Québec, Canada, H3T 1J4

Cet article a été publié dans la revue *Geoderma* le 15 février 2016 (disponible en ligne le 12 novembre 2015).

La référence complète est :

Boudreault, Jean-Philippe, Jean-Sébastien Dubé et Denis Marcotte. 2016. « Quantification and minimization of uncertainty by geostatistical simulations during the characterization of contaminated sites: 3-D approach to a multi-element contamination ». *Geoderma*, vol. 264, Part A, 214-226.

Abstract

The remediation of contaminated sites is recognized as a means towards the sustainable development of an expanding urban space on the global scale. However, it is often hindered by financial and environmental risks caused by undetected contamination or unreliable site characterization. Uncertainty in site characterization studies is suspected to be a cause of this problem. Therefore, there is a need for formally defining and quantifying the uncertainty linked to estimates of the spatial distribution of contamination and the volume of contaminated soils at polluted sites. The objective of this study was to develop a

geostatistical procedure for the 3-D analysis of a multi-element contamination in order to: 1) optimize the location and the number of sampling stations during a complementary sampling campaign, 2) estimate the volume of contaminated soil for a given data set and 3) quantify the uncertainty of this estimate. This procedure is innovative because it takes into account, by a transformation in pollution indices, the presence of a multi-element contamination and applies to a set of 3-D data. Furthermore, this procedure offers a formal framework that adapts the decisional bounds to the study site to help the decision-maker. The proposed procedure was applied to an urban site characterized by the presence of a strongly heterogeneous fill. From a subset initially constituted of 8 sampling stations, supplemental sampling stations were selected within a complementary data set and added one by one to the iterative geostatistical simulations. The completeness of the sampling plan was determined upon reaching stability in the relative differences of both global uncertainty and global variance between two successive steps of the optimization. According to the procedure presented, a sampling plan could be considered optimized and complete with 19 sampling stations for this study site (comparatively to 38 sampling stations for the total set obtained by systematic sampling). For 19 sampling stations, the global uncertainty was determined to be 20% (comparatively to 16% for the total set).

Keywords: Urban contaminated site; Uncertainty quantification and minimization; Optimization; Sampling plan; Geostatistical simulations; 3-D analysis

5.1 Introduction

The remediation of contaminated sites is recognized as means towards the sustainable development of an expanding urban space on the global scale (Biasioli, Barberis et Ajmone-Marsan, 2006; Dorsey, 2003; Hou et Al-Tabbaa, 2014; Paull, 2008; Preville, 2004). However, it is often hindered by financial and environmental risks caused by undetected contamination or unreliable site characterization (TRNEE - Table ronde nationale sur l'environnement et l'économie, 2003; Woll et al., 2003). Uncertainty in site characterization studies is suspected to be a cause of this problem (Woll et al., 2003). Therefore, there is a

need for formally defining, quantifying and minimizing the uncertainty linked to estimates of the spatial distribution of contamination and the volume of contaminated soils at polluted sites.

Geostatistics allow both the estimation of quantities and uncertainty linked to these estimations. In contaminated site characterization, geostatistical methods have been used to estimate the volumes of soils whose concentration exceeds a regulatory criterion, to calculate the probabilities of exceeding these criteria and to evaluate the uncertainty of these estimations (Cattle, McBratney et Minasny, 2002; De Fouquet, 2011; Ersoy, Yunsel et Cetin, 2004; Glavin et Hooda, 2005; Goovaerts, 1999; 2001; Juang et Lee, 1998; Myers, 1997; Van Meirvenne et Goovaerts, 2001).

In recent years, geostatistical simulation methods have been used increasingly in contaminated site characterization (D'Or, Demougeot-Renard et Garcia, 2009; Ersoy, Yunsel et Atici, 2008; Horta, Carvalho et Soares, 2008; Horta et al., 2013). In this context, geostatistical simulations generate a set of possible estimates (i.e. set of realizations) of the spatial distribution of contaminant concentrations that share the same spatial structure (i.e. variogram) and the same histogram as the observed data (i.e. known concentrations of contaminants measured from soil samples). Simulations are conditional when the observed data have to be reproduced by each realization. They have the advantage of providing a range of possible concentration values at each field location, as opposed to the optimal value as estimated by kriging (Chilès et Delfiner, 2012; Deutsch et Journel, 1998; Goovaerts, 1997; 2001; Juang, Chen et Lee, 2004; Matheron, 1973). This range of possible concentration values for a given field location provides exceedance probabilities for a given soil quality threshold. These exceedance probabilities can be considered as measures of the local uncertainty (i.e. uncertainty at a given field location) (Goovaerts, 2001). In turn, spatial uncertainty (or global uncertainty) is a measure that takes into account values (ex. local uncertainty, simulated concentration, etc.) assigned to different locations (or grid nodes) on the study site, either considered simultaneously or sequentially (Goovaerts, 2001; Goovaerts, 2005).

In contaminated site characterization, the quantification and minimization of uncertainty relies strongly on the quality, the quantity and the location of concentration measurements. The latter is a key to the optimization of sampling plans. Initially, the choice of supplemental sampling stations was based on the estimation variance resulting from kriging (Burgess, Webster et McBratney, 1981) or on the exceedance probability of a fixed criterion by using indicator kriging (Juang et Lee, 1998). More recently, some applications of geostatistical simulations to the optimization of sampling plans have been reported (D'Or, 2005; Demougeot-Renard, De Fouquet et Renard, 2004; Verstraete et Van Meirvenne, 2008). Demougeot-Renard et al. (2004) proposed a categorization of soil based on the exceedance probability of a concentration threshold, as obtained by conditional simulations. Three categories of soil volumes were thus defined based on the risk (probability) of exceeding the threshold, namely: 1) the low-risk category, 2) the uncertain category and 3) the treatment-required (high-risk) category. In order to optimize the location of the supplemental sampling points, the new samples to be collected were located within an uncertain volume determined by two pre-established bounds α and β , representing probabilities of exceeding a concentration threshold. In the Demougeot-Renard et al. study (2004), these boundaries were fixed arbitrarily at 0.2 and 0.6 respectively for α and β . Verstraete and Meirvenne (2008) and D'Or (2005) used bounds of 0.2 and 0.8 respectively. In both cases, the choice of boundaries was left to the discretion of the decision-maker. However, there is a need to develop a formal framework that adapts the bounds of soil categories to site-specific characteristics of the contamination to enable an objective choice by the decision-maker.

Geostatistical methods, whether they were based on kriging or simulations, have generally been used in two-dimensional applications on a surface layer of soil and for the analysis of the spatial distribution of a single contaminant. However, on most contaminated sites, several metals and organic contaminants are found simultaneously (Dermont et al., 2008). Hence, the majority of these geostatistical applications do not provide a practical solution to the spatial estimation of various contaminants in 3D-space for the purpose of planning a sampling campaign, for estimating the quantity of contaminated soil and for quantifying and

minimizing the uncertainty on this estimation. Moreover, no rationale has been proposed to determine the bounds that frame the probability of exceeding concentration thresholds.

5.1.1 Objectives

The objective of this study was to develop a geostatistical procedure for the 3-D analysis of a multi-element contamination in order to: 1) optimize the location and the number of sampling stations during a complementary sampling campaign, 2) estimate the volume of contaminated soil for a given data set and 3) quantify the uncertainty of this estimate.

Moreover, the developed geostatistical procedure aims to enable the categorization of the soil according to the probability of exceeding regulatory thresholds using a formal framework that adapts the bounds of soil categories to site-specific characteristics of the contamination.

5.2 Material and methods

5.2.1 Study site

5.2.1.1 Description of the site

The study site was located in downtown Montreal (Canada) and consisted of a surface layer of heterogeneous fill, 2 to 3 m thick, and overlying a fluvio-glacial deposit. A survey of the history of the site revealed that the heterogeneous fill was the result of landfilling domestic wastes, incineration residues and demolition debris over successive development and demolition phases spanning the last 150 years. Previous characterization studies showed that the underlying fluvio-glacial deposit was uncontaminated and that the fill was mainly contaminated by metals (Cu, Pb, Zn) and PAHs (e.g. chrysene, phenanthrene, benzo(a)pyrene, benzo(a)anthracene, benzo(b, j, k)fluoranthene, indeno(1, 2, 3-cd)pyrene) at concentrations exceeding legal thresholds (Quéformat, 2004b). Moreover, several types of

waste materials (e.g. bricks, concrete, metallic debris, slag, ash) were found in varying proportions (Boudreault et al., 2010).

5.2.1.2 Soil sampling and chemical analysis

Only the heterogeneous fill layer was sampled for the present study. Thirty-two sampling stations were established on a systematic grid in an area of 28 m x 46 m, thus corresponding to a grid space of 6 to 7 m. This area covered the entire surface of the site not occupied by buildings. Six supplemental stations were added to this systematic grid in order to characterize the spatial structure (i.e. variogram) at distances less than 5 m. At each sampling station, sampling points were located at vertical intervals of maximum 0.5 m and in each distinct stratum identified in the fill. Strata were differentiated by their visual characteristics, namely: the proportion and type of residual matter, their color and their texture. This resulted in 141 sampling points. The samples were taken at each sampling point in accordance with the sampling procedure detailed in Boudreault et al. (2012).

Hence, each primary field sample of soil was reduced to a 1-g sample for chemical analysis, following a procedure involving successive mass reduction and grinding phases (Boudreault et al., 2012). These analytical samples were digested with nitric and hydrochloric acids according to CEAEQ (2014). The extracts were diluted to 50 mL and filtered at 0.45 μm , then analyzed by argon plasma atomic emission spectroscopy (ICP-AES) to measure the concentrations (in mg/kg) of cadmium (Cd), cobalt (Co), chromium (Cr), copper (Cu), manganese (Mn), nickel (Ni), lead (Pb), tin (Sn) and zinc (Zn). PAH analysis was not performed in this study.

Furthermore, 10% of the primary samples were taken in duplicate and subjected to the same sampling and analysis procedures to control the quality of the data. All measured concentrations were above the quantification limit of the analytical method.

5.2.2 Geostatistical procedure

Before proceeding with the geostatistical analysis, a descriptive statistical analysis was performed on the data. A 3-D representation, without interpolation, was also performed to spatially schematize the data.

The general geostatistical procedure consisted in five phases:

1. Transform data;
2. Model the horizontal and vertical variograms on the anamorphosed maximum pollution indices (MPI);
3. Perform geostatistical simulations;
4. Calculate the local and global uncertainty and the global variance;
5. Optimize the sampling plan by adding a supplemental sampling station;
6. Repeat steps 3 and 4 until stability for both global uncertainty and global variance values was obtained.

5.2.2.1 Data transformation

To account for multi-element contamination (i.e. nine elements in this case) and several legal threshold concentrations, a transformation procedure was developed. It consisted in transforming contaminant concentration into dimensionless pollution indices (PI) according to Equation (5.1):

$$IP_{Z(x_0)} = \begin{cases} \frac{Z(x_0)}{z_{c_1}}, & \text{if } Z(x_0) < z_{c_1} \\ i + \frac{Z(x_0) - z_{c_i}}{z_{c_{i+1}} - z_{c_i}}, & \text{if } z_{c_i} \leq Z(x_0) < z_{c_{i+1}} \quad (1 \leq i \leq m-1) \\ m + \frac{Z(x_0) - z_{c_m}}{z_{c_m}}, & \text{if } Z(x_0) \geq z_{c_m} \end{cases} \quad (5.1)$$

where m is the number of legal thresholds ($m = 4$ in this study), $Z(x_0)$ is the concentration (mg/kg) of the Z contaminant at the given point x_0 , z_{c_i} is the value of i^{th} threshold (mg/kg) and $IP_{Z(x_0)}$ is the pollution index (dimensionless) calculated for a specific contaminant at a given point.

In this study, the legal thresholds were the following:

- threshold concentrations in appendix II of the Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés (MDDEP, 1998) , which correspond to background concentrations for the Saint-Lawrence lowlands, hereafter called threshold A;
- threshold concentrations in appendices I and II of the Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains in Publications du Québec (2015b), hereafter called thresholds B and C respectively;
- threshold concentrations in appendix I of the Règlement sur l'enfouissement des sols contaminés in Publications du Québec (2015a), hereafter called threshold D.

Pollution indices from 1 to 4 were assigned respectively to the four thresholds (A, B, C and D).

After this transformation in PI, a maximum pollution index (MPI) is attributed to a given sampling point from the maximum PI value among the nine elements.

A gaussian anamorphosis of the set of all MPIs was then performed as described in Goovaerts (1997) so that it followed a Gaussian distribution with $\mu = 0$ and $\sigma^2 = 1$.

5.2.2.2 Modeling the horizontal and vertical variograms

A theoretical 3-D variogram was calculated from the anamorphic MPIs as in Verstaete and Meirvenne (2008). It consisted in modeling the experimental horizontal and vertical

variograms separately. An angular tolerance of 90 degrees was used for the horizontal variogram as well as a maximum vertical distance of 0.5 m between points from data pairs. Zero angular tolerance was used for the vertical variogram, so that the experimental variogram was calculated exclusively from data pairs coming from the same sampling station.

In order to assess the impact on the variogram of transforming data into MPIs, a variographic analysis was conducted using the predominant contaminant (i.e. the one having the largest proportion of measured concentrations larger than the C threshold). For this contaminant, the horizontal and vertical variograms were determined from the concentrations in mg/kg and from the MPIs. The impact of data transformation was thus assessed by comparing the nugget-to-sill ratios and the range of the fitted variogram models.

5.2.2.3 Geostatistical simulations

Conditional simulations, more specifically the LU simulation algorithm, were used in this study. The LU algorithm was preferred to other simulation methods for its efficiency and the simplicity of its programming (Alabert, 1987; De Iaco et Palma, 2002). The use of the LU method is convenient but limited to small fields. For larger fields, other methods of simulation of Gaussian fields could be used as well. Being a Gaussian method, the LU conditional simulation requires prior Gaussian anamorphosis of the observed data (see section 5.2.2.1). Simulations were conducted using a 3-D mesh with a volumetric unit size $VU = 1.2 \text{ m}^3$ (i.e. 2m long by 2m wide by 0.3m thick). This 3-D mesh was a regular grid not coincident with the locations of the observed data. The simulations were done with an equivalent support to that of the data (i.e. without change of support) on a fine grid of 2m x 2m x 0.3m, which was considered sufficient to well approximate the contaminated volumes. The thickness of the fill was considered to be a spatially distributed variable and was estimated using ordinary kriging with the fill thicknesses determined at the 38 sampling

stations. This kriged bottom surface of the fill was thus used as a lower limit to the simulation volume.

A total of 100 realizations were performed from the anamorphic MPIs of the 38 sampling stations. Subsequently, an inverse transformation of the simulated values was done in order to convert the data in non-anamorphic pollution indices. For each simulated unit (or unit volume, V_U), the simulation variance and the exceedance probability in relation to the four thresholds (A to D) were calculated.

The exceedance probability was obtained by calculating, for each unit, the proportion of simulated values larger than each threshold as:

$$P(x) = P[T(x) \geq S|n] = \frac{1}{K} \sum_{i=1}^K \{I[T_i(x|n); S]\} \quad (5.2)$$

where

$$I[T(x|n); S] = \begin{cases} 1, & \text{if } T(x|n) \geq S \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (5.3)$$

K is the number of realizations, $T_i(x|n)$ is the simulated MPI value of the i^{th} realization at the simulated unit x (value conditioned by n observations) and $P(x)$ is the probability that $T(x|n)$ is larger or equal to the threshold S (i.e. dimensionless value of 1 to 4 for thresholds A to D respectively).

The simulation variance was obtained at each unit by calculating the variance of the 100 pollution indices simulated at that unit (obtained from the 100 realizations).

$$\sigma^2(x) = \frac{1}{K} \sum_{i=1}^K [T_i(x|n) - \bar{T}(x|n)]^2 \quad (5.4)$$

where $\bar{T}(x|n)$ is the average of K simulated values at the simulated unit x and $\sigma^2(x)$ is the variance of these K simulated values.

For each simulation, the volume of contaminated soil was calculated by multiplying the number of units corresponding to each threshold by the unit volume V_U . For example, the volume of contaminated soil between the B and C threshold, for a given realization, was calculated as follows:

$$V_{BC} = V_U \sum_{i=1}^U \{I_{BC}[T_i(x|n)]\} \quad (5.5)$$

where

$$I_{BC}[T(x|n)] = \begin{cases} 1, & \text{if } 2 \leq T(x|n) < 3 \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (5.6)$$

and U is the total number of units for the entire site. Thereafter, for each legal threshold, the confidence interval on the calculated volume was obtained from the distribution of the K values for these volumes (i.e. a specific volume is calculated for each of the K realizations). Confidence level was set at 95% for these confidence intervals.

5.2.2.4 Optimization of the sampling plan

To determine the optimal number of sampling stations and to quantify and minimize the uncertainty, an optimization procedure similar to that of Demougeot-Renard et al. (2004) and Verstraete and Meirvenne (2008) was developed. Herein, it allowed the determination of the location of supplemental sampling stations instead of the location of supplemental sampling points, as is the case in the reported studies. Indeed, during a complementary sampling campaign on the field, the resources invested to produce additional data (i.e. a sampling point) are virtually the same as the ones to produce a supplemental sampling station (a sampling station consisting of many vertical sampling points at a given x-y coordinate).

In order to simulate the optimization of a sampling plan by an adaptive process, the initial set of 38 sampling stations was divided into two subsets: the initial subset corresponded to a preliminary characterization and the second subset included the data from complementary sampling (i.e. the results of the sampling stations not used in the initial subset).

The initial subset of sampling stations was chosen based on the results of the geophysical characterization performed on this site (Boudreault et al., 2010). The latter showed four different areas with distinct geophysical electromagnetic, magnetic and electrical anomalies corresponding to areas with larger proportions of demolition debris and wastes. Two sampling stations were selected in each area, creating a subset consisting of eight sampling stations.

A first geostatistical estimation of the contaminated volume and the uncertainty was performed by conditional simulations on the anamorphic MPIs of all observations from this initial subset. Thereafter, with the optimization procedure, the sampling station with the largest score according to Equation (5.16) (see section 5.2.2.7) was selected among all the unused stations of the complementary subset. The MPIs for all sampling points of this station were then added to the initial subset and new estimations of the contaminated volume and the uncertainty were performed by conditional simulations. These steps were repeated until all the stations constituting the complementary subset were fully added to the initial subset.

In this study, the horizontal and vertical variograms obtained with the 38 sampling stations were considered constant during the optimization of the sampling plan and the same fitted variogram models were used in all conditional simulations. This hypothesis was assumed for simplicity. In an ongoing characterization study, the variogram model will be continuously updated as new data are obtained. Moreover, other techniques of estimation like cross-validation (Marcotte, 1995) or maximum likelihood (Cressie, 1991) could be used as better alternatives with few data.

5.2.2.5 Categorization of the soil

A categorization of the soil according to the exceedance probability $P(x)$ was done based on the method developed by Demougeot-Renard et al. (2004), namely as 1) low-risk 2) uncertain and 3) treatment-required (high-risk) categories.

The volume of soil categorized as low-risk (V_{lr}) was constituted of units (or simulated grid cells) whose exceedance probability with respect to the threshold was small, i.e. smaller than a fixed lower probability bound, α . The low-risk volume was calculated as follows:

$$V_{lr}(\alpha) = V_U \sum_{i=1}^U \{I_{lr}[P_i(x); \alpha]\} \quad (5.7)$$

where

$$I_{lr}[P(x); \alpha] = \begin{cases} 1, & \text{if } P(x) \leq \alpha \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (5.8)$$

The volume to be treated (V_{tr}) was constituted of units whose probability of exceeding the threshold was large, i.e. larger than a fixed higher probability bound, β . The volume to be treated was calculated as follows:

$$V_{tr}(\beta) = \sum_{i=1}^U \{V_U \times I_{tr}[P_i(x); \beta]\} \quad (5.9)$$

where

$$I_{tr}[P(x); \beta] = \begin{cases} 1, & \text{if } P(x) > \beta \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (5.10)$$

Finally, the uncertain volume (V_{unc}) was constituted of all the other elements, i.e. the ones whose probability were between bounds α and β . This volume corresponded to the locations on the site that needed a supplemental characterization. The uncertain volume was calculated as follows:

$$V_{\text{unc}} = \sum_{i=1}^U \{V_U \times I_{\text{unc}}[P_i(x); \alpha, \beta]\} \quad (5.11)$$

where

$$I_{\text{unc}}[P(x); \alpha, \beta] = \begin{cases} 1, & \text{if } \alpha < P(x) \leq \beta \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (5.12)$$

These categories of soil volumes were determined for each legal threshold. The final decision (low-risk, uncertain or to be treated) for each unit can take all thresholds into account. For the study site and for simplification purposes, only threshold C was selected to calculate the exceedance probabilities.

5.2.2.6 Bounds α and β

A formal procedure was developed to quantify bounds α and β . Lower bound α was determined so that the average probability of exceedance within the low-risk volume is smaller than 5%.

$$\bar{P}(\alpha) \leq 0.05 \quad (5.13)$$

where $\bar{P}(\alpha)$ is the average probability of exceeding threshold S within the low-risk volume, which varies depending on the bound α and is calculated as follow:

$$\begin{aligned}\bar{P}(\alpha) &= P[T(x|n) \geq S | x \in V_{lr}(\alpha)] \\ &= \frac{1}{K \sum_{i=1}^U \{I_{lr}[P_i(x); \alpha]\}} \sum_{j=1}^K \sum_{i=1}^U \{I_{lr}[P_i(x); \alpha] \times I[T_j(x|n); S]\}\end{aligned}\quad (5.14)$$

An interval of possible values for bound β was determined based on the distribution of the K contaminated volumes.

$$V_{\frac{\omega}{2}} \leq V_{tr}(\beta) \leq V_{(1-\frac{\omega}{2})} \quad (5.15)$$

where ω is fixed at 5%, therefore corresponding to a 95% confidence interval on the volume V of contaminated soils over a given threshold (obtained from the distribution of the K volumes calculated for the K realizations).

In this study, a sensitivity analysis was also conducted on α and β to determine their influence on the categorization of soil. The result of this sensitivity analysis is presented in section 5.3.4. As expected, lowering bound α diminishes V_{lr} and increases V_{unc} . Increasing bound β diminishes V_{tr} but increases V_{unc} .

5.2.2.7 Selection of the supplementary sampling stations

The selection of a supplementary sampling station in the complementary subset was based on the following equation:

$$S_{tot}(x_0) = \sum_{i=1}^L w_i Par_i(x_0) \quad (5.16)$$

where $S_{tot}(x_0)$ is the total score attributed to the location x_0 from the complementary subset, w_i is the weight attributed to the i^{th} selection parameter (Par) and L is the number of selection parameters. The supplementary station to be added to the sampling plan was the

one having the maximum score for $S_{tot}(x_0)$. Each selection parameter can have a value between 0 and 1.

The three selection parameters chosen for the selection of the supplementary stations were inspired by the procedures of Demougeot-Renard et al. (2004) and Verstraete and Meirvenne (2008). These were: 1) the probability of exceeding a given threshold (Par_1), 2) the variance of the simulations (Par_2), 3) the distance of the nearest sampling station (Par_3). Weights of 0.5, 0.4 and 0.1 were attributed respectively to these parameters.

Parameter 1 was calculated with Equation (5.17), based on the difference between the exceedance probability $P(x_0)$ determined at point x_0 (in the complementary subset) and the central probability of the uncertain volume (the average of bounds α and β). Parameter 1 assigned a maximum value to the stations in the complementary subset for which the exceedance probability was between bounds α and β (i.e. in the uncertain volume).

$$Par_1(x_0) = \max(0, 1 - 2 \left| P(x_0) - \frac{\alpha + \beta}{2} \right|) \quad (5.17)$$

Parameter 2 was calculated based on the variance $\sigma^2(x_0)$ of the K simulated PI at point x_0 (in the complementary subset) as described by Equation (5.18). This parameter assigned a maximum value to the stations in the complementary subset for which the simulated MPIs are more variable.

$$Par_2(x_0) = \min(1, \frac{\sigma^2(x_0)}{\sigma_{75\%}^2}) \quad (5.18)$$

where $\sigma_{75\%}^2$ is the 75th percentile of the simulation variances (see Equation (5.4)) obtained with the previous dataset.

Parameter 3 was calculated based on the distance separating the sampling stations according to the following equation:

$$Par_3(x_0) = \frac{d_{min}(x_0)}{d_{max}} \quad (5.19)$$

where $d_{min}(x_0)$ is the horizontal distance between point x_0 (from the complementary subset) and the nearest sampling station (from the previous dataset used for conditional simulations) and d_{max} is the maximum horizontal distance between any station from the complementary subset and its nearest sampling station. This parameter assigned a maximum value to the stations from the complementary subset farther from known data points, i.e. in areas where few data are available. This third parameter discriminates between two stations that have approximately the same value for Par_1 and Par_2 .

Note that Par_1 measures the certainty of the classification as «low-risk» or «treatment-required». A classification as «uncertain volume» (i.e. high value for Par_1) may be either well informed (close to existing data) or not (far from existing data). Par_2 seeks precisely to discriminate between these two occurrences of uncertain points by favoring the points least informed, that will show a larger variance.

5.2.2.8 Global uncertainty and global variance

In this study, two types of uncertainty were considered: local and global uncertainty. The local uncertainty is the uncertainty at a given point, while the global uncertainty is a measure of the uncertainty at the site scale. The global uncertainty can be also considered as a measure of the completeness of a sampling plan at the site scale.

The local uncertainty is determined by bounds α and β . A given unit U is considered uncertain when its exceedance probability is between bounds α and β .

The global uncertainty was defined in this study as being equal to the ratio between the uncertain volume (V_{unc}) and the total volume of the site (V_{tot}). The evolution of the global

uncertainty was calculated at each step of the optimization of the sampling plan (i.e. from 8 to 38 sampling stations).

Moreover, the median variance of the MPI values for all K realizations was also calculated at each step of the optimization process and was considered as the global variance value.

The choice of the optimal number of sampling stations was based on the evolution of both the global uncertainty and the global variance. This evolution was calculated for each step of the optimization by determining the relative difference between two successive optimization steps. The optimal number of sampling stations was determined when stability for both global uncertainty and global variance values was obtained. Stability was achieved when the relative difference between two successive steps was below 10% three times in a row. The final estimated volume of contaminated soil and its associated global uncertainty were determined for the optimal set of sampling stations.

5.3 Results and discussion

5.3.1 Summary description of the data

5.3.1.1 Descriptive statistics for metals

Table 5.1 shows the descriptive statistics by element, for both data in mg/kg and for data transformed in PI. The proportions for each contamination level are also presented for each metal. For all elements, the data was positively skewed. The coefficients of variation ranged from 21.4% to 142%. The concentrations of copper (Cu), lead (Pb), tin (Sn), and zinc (Zn) were distributed across four contamination levels (i.e. from <A to C-D), hence the larger coefficients of variation for these metals. The concentrations of other metals were mostly below the A threshold, except for cadmium (Cd), which showed concentrations between the B and C thresholds. It should also be noted that no concentration exceeded the D threshold.

Table 5.1 Descriptive statistics on the concentrations in mg/kg of metals and maximum pollution indices

Metal	Sample size	Quantification limit (mg/kg)	Minimum (mg/kg)	Maximum (mg/kg)	Mean (mg/kg)	Median (mg/kg)	Variance (mg²/kg²)	Coefficient of variation (%)	Skewness (mg³/kg³)
Cd	141	0.77	5.0	17.4	10.0	9.9	5.0	22.4	0.4
Co	141	0.49	6.2	18.2	10.1	9.7	4.7	21.4	1.0
Cr	141	0.35	14.3	57.8	25.6	24.8	42.7	25.6	1.9
Cu	141	0.31	18.6	615	84.9	59.7	6 730	96.6	3.6
Mn	141	13	289	1 060	518	508	12 400	21.5	0.9
Ni	141	1.1	4.5	206	27.2	26.4	263	59.5	9.7
Pb	141	3.1	18.0	2 480	476	333	263 000	108	1.8
Sn	141	10.3	<QL*	712	67.7	38.8	9 220	142	3.5
Zn	141	3.3	34.0	3 320	419	260	213 000	110	3.0
Maximum Pollution Index (MPI)	141	--	2.0	3.4	2.5	2.4	0.1	13.5	1.1

*<QL: value below the quantification limit

Table 5.1 (continuation) Descriptive statistics on the concentrations in mg/kg of metals and maximum pollution indices

Metal	Sample size	Threshold (mg/kg)				% <A	% AB	% BC	% CD	Mean value of Pollution Index (PI)	Maximum value of Pollution Index (PI)
		A	B	C	D						
Cd	141	1.5	5	20	100	0.0	0.0	100	0.0	2.33	2.83
Co	141	15	50	300	1500	97.2	2.8	0.0	0.0	0.22	1.09
Cr	141	85	250	800	4000	100	0.0	0.0	0.0	0.10	0.23
Cu	141	40	100	500	2500	24.1	53.9	20.6	1.4	1.32	3.06
Mn	141	770	1000	2200	11000	98.6	0.7	0.7	0.0	0.53	2.05
Ni	141	50	100	500	2500	99.3	0.0	0.7	0.0	0.27	2.27
Pb	141	50	500	1000	5000	17.0	48.9	22.0	12.1	1.62	3.37
Sn	141	5	50	300	1500	14.9	41.1	41.1	2.8	1.59	3.34
Zn	141	110	500	1500	7500	17.0	57.4	22.0	3.5	1.44	3.30
Maximum Pollution Index (MPI)	141	1	2	3	4	0.0	0.0	85.8	14.2	--	--

Tin (Sn) was the only metal having concentrations below the quantification limit (QL). However, these qualitative observations ($<QL$) do not have an impact on the transformation into MPI, because all MPIs are at least above the B threshold due to Cd.

Lead (Pb) had the largest mean PI with 1.62, the largest PI with 3.37 and the largest proportion of data greater than threshold C with 12%, which make it the predominant contaminant on the study site.

The last line of Table 5.1 shows the statistical descriptors calculated from MPIs. Similarly to all metals, the distribution of MPIs was positively skewed. A total of 85.8% of MPIs were between 2 and 3 (i.e. in the B-C range), while the remainder, 14.2%, were between 3 and 4 (i.e. in the C-D range).

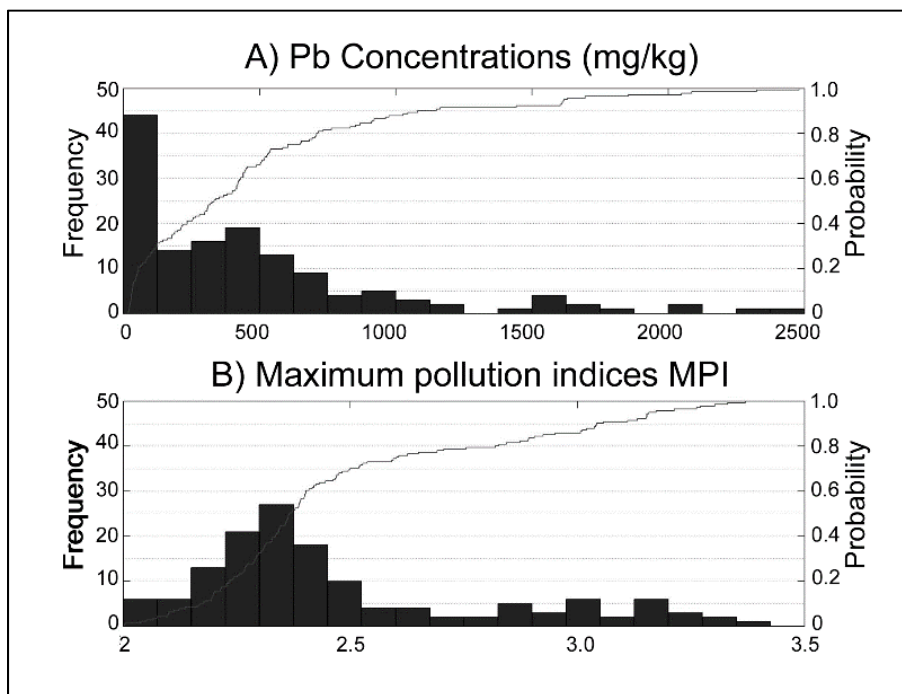


Figure 5.1 Histogram and distribution function (blue line) for
 A) Pb concentrations and B) maximum pollution indices (MPIs)

Figure 5.1 shows the histograms and the distribution functions of Pb concentration (top) and MPI (bottom). The first was characterized by a large frequency of low concentration values. However, this feature was absent from the MPI histogram because all Cd concentrations were larger than threshold B.

5.3.1.2 Mapping spatial contamination

Figure 5.2 shows a 3-D map of MPI values. It should be noted that the total volume of the fill was estimated by ordinary kriging at 2290 m^3 ($V_{\text{tot}} = 2290 \text{ m}^3$). Red dots (i.e. $\text{MPI} > 3$) were located on the edges of the site as well as in its central portion. They were mainly found at a depth greater than 1 meter.

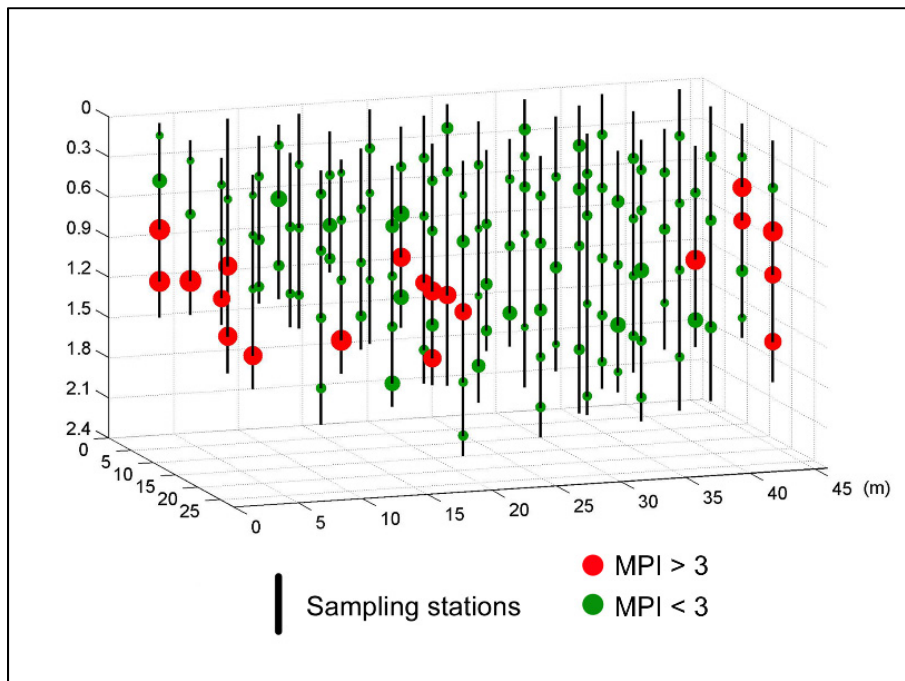


Figure 5.2 3-D representation of the MPIs

(The vertical lines represent the location of the sampling stations while the dots represent the sampling points. The length of the vertical lines represent the thickness of the fill. Dots are red when the MPI value assigned to a sampling point is above 3 (i.e. legal threshold C) and green when this value is under 3. The size of the dot is proportional to its MPI value.)

5.3.2 Horizontal and vertical variograms

5.3.2.1 Influence of the transformation into PIs on the spatial structure

The horizontal and vertical variograms were inferred for Pb before and after the transformation of concentrations into PIs. They are shown in Figure 5.3.

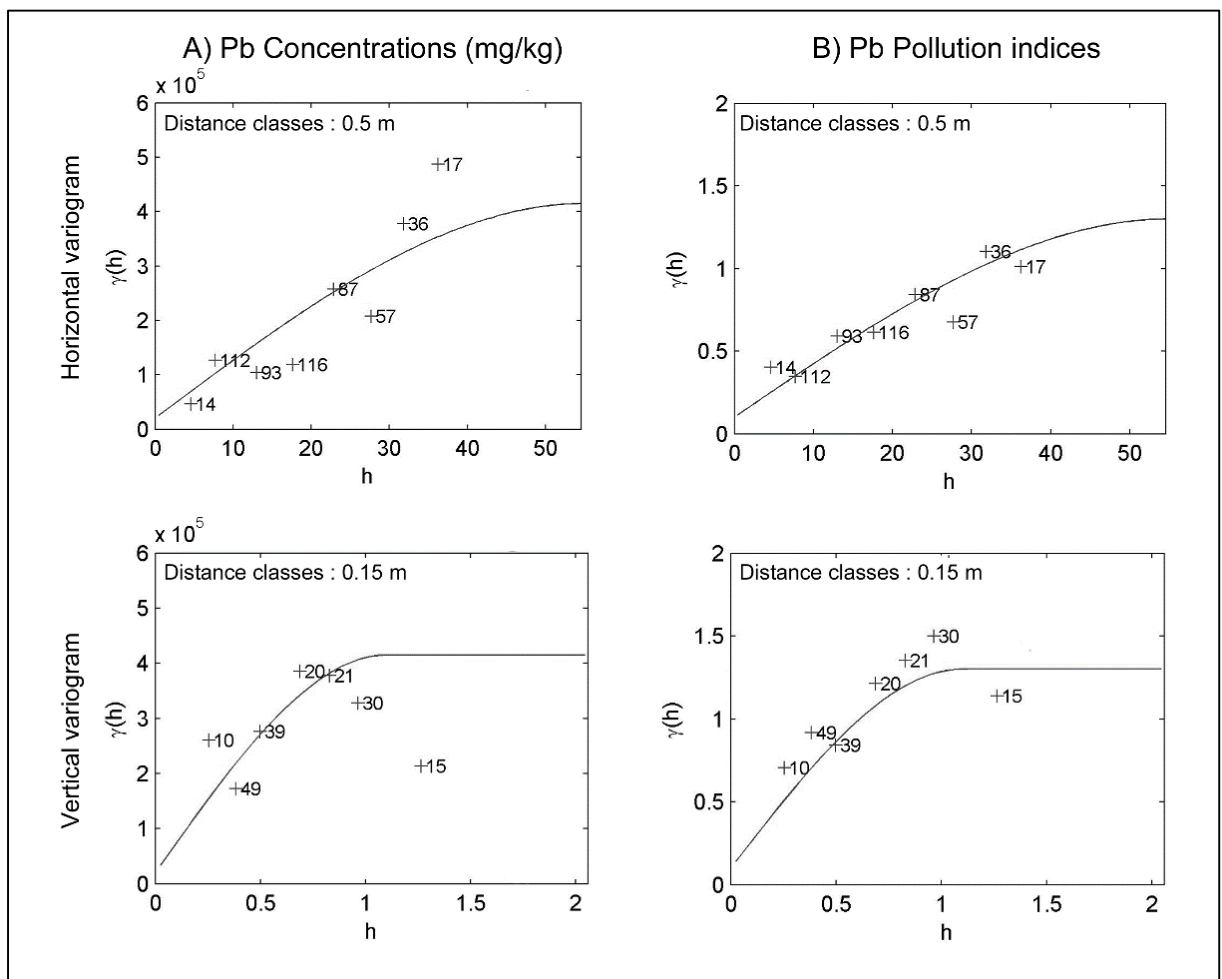


Figure 5.3 Horizontal and vertical variograms for Pb before (concentration in mg/kg on the left) and after transformation (dimensionless PIs on the right)
(Number of pairs is given for each distance class)

The experimental Pb variograms showed slight differences after the transformation of concentrations into PIs. The nugget, the sill, the range, and the nugget-to-sill ratio of each of the fitted variogram models are shown in Table 5.2. These results show that the ranges were equivalent for both the horizontal and the vertical variograms. The nugget-to-sill ratios were also very similar, slightly higher after the transformation of concentrations into PIs. Therefore, since the transformation of Pb concentrations did not significantly alter the theoretical variogram, we assumed that the transformation of concentrations of all metals into PIs simultaneously did not create a false structure in the spatial distribution of the contamination.

Table 5.2 Comparison of the parameters of the variograms for Pb

Variogram		Model	Nugget	Sill	Range	Nugget-to-sill ratio
Horizontal	Pb Concentrations	Spherical with nugget	20 000	415 000	55	0.048
	Pb pollution indices (PI)	Spherical with nugget	0.1	1.3	55	0.077
Vertical	Pb Concentrations	Spherical with nugget	20 000	415 000	1.1	0.048
	Pb pollution indices (PI)	Spherical with nugget	0.1	1.3	1.1	0.077

5.3.2.2 Variogram model

After data transformation of all metal concentrations into MPIs, a Gaussian anamorphosis was performed on the latter. The variogram model inferred from the experimental variogram of anamorphosed MPIs is shown in Figure 5.4. The equation of this variogram $\gamma(h)$ was:

$$\gamma(h) = 0.3 + 1.0 \text{ Sph}(60 \text{ m}_{\text{hor}}, 1 \text{ m}_{\text{ver}}) \quad (5.20)$$

where h is a distance vector, Sph is a spherical model of an anisotropic variogram with specific ranges in the horizontal (hor) and vertical (ver) directions.

The range in the horizontal direction (i.e. 60 m) was of the order of the largest dimension of the site (i.e. 54 m diagonal). This was explained by the fact that several sampling points presented larger metal concentrations at the edges of the study site (see section 5.3.1.2). The range in the vertical direction (i.e. 1 m) globally represented the vertical distance for which the concentrations of sampling points were correlated. This distance was approximately the maximum thickness of strata of different soils or materials observed in the fill.

The Gaussian anamorphosis ensures normality of the marginal distribution. Bivariate normality was checked by computing the ratio of the variogram to the square of the madogram (Chilès and Delfiner, 2012, p. 425). Figure 5.5 shows a reasonably constant ratio supporting the bivariate normality. Multivariate normality is assumed afterwards.

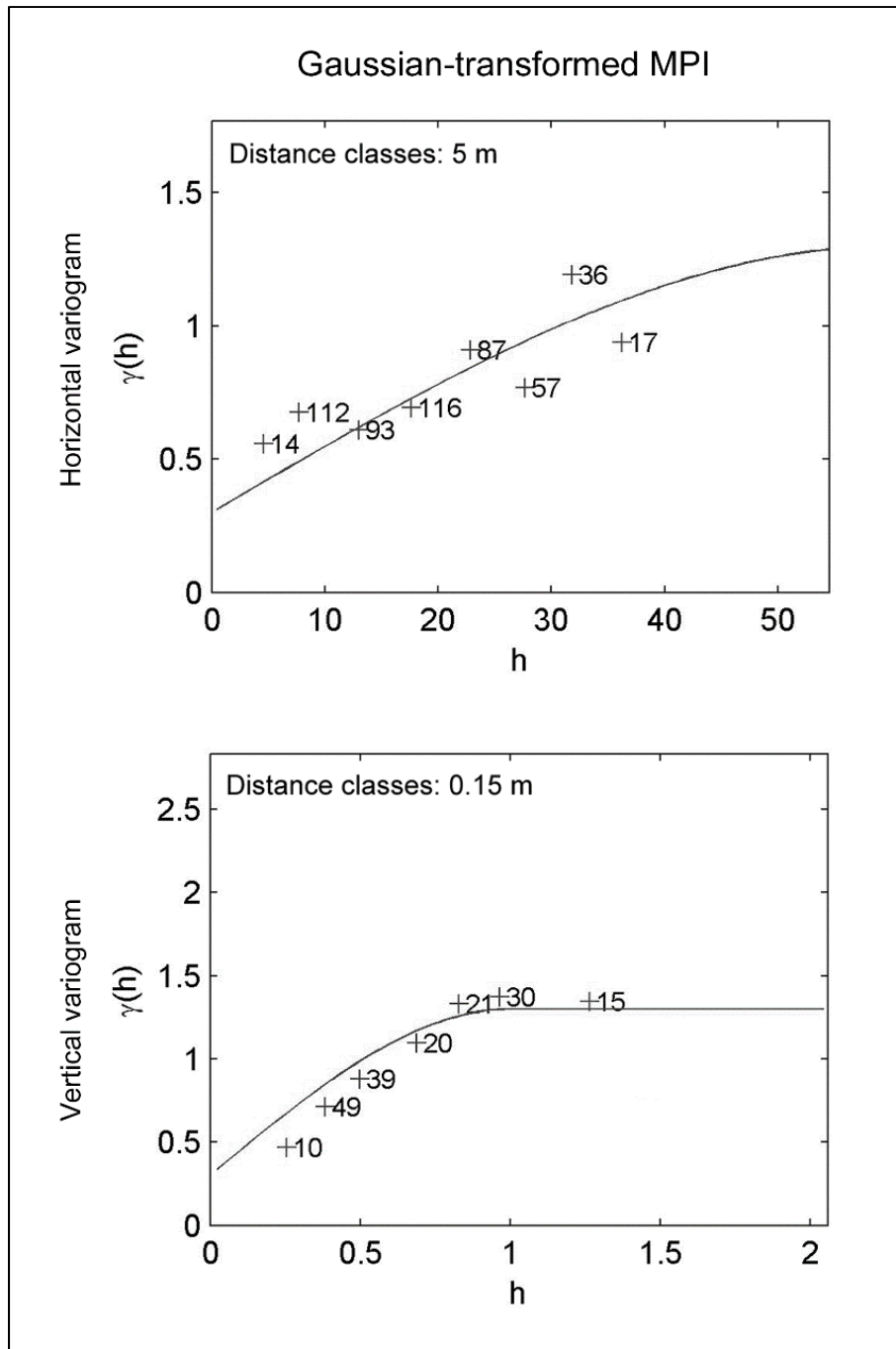


Figure 5.4 Horizontal and vertical variograms
on the anamorphosed MPIs
(Number of pairs is given for each distance class)

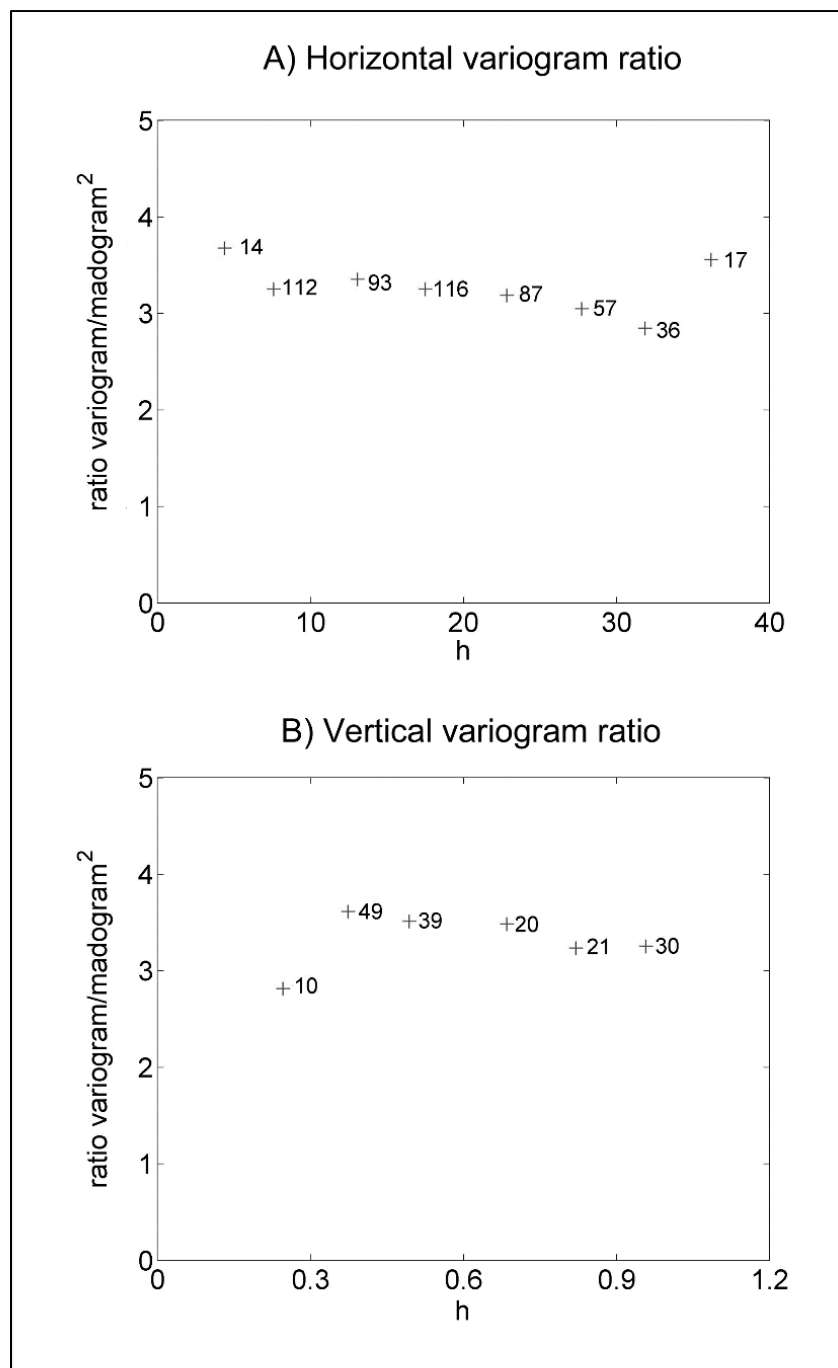


Figure 5.5 Ratio of the variogram to the square of the madogram for A) horizontal variogram and B) vertical variogram (Number of pairs is given for each distance class)

5.3.3 Conditional simulations

Conditional simulations were performed on all the data, taking into account all 38 sampling stations. The maps of local variance and of the probability of exceeding threshold C obtained from 100 realizations are shown in Figure 5.6.

When taking into account all 38 sampling stations, the local variance was relatively small. Only two sections on the edges of the site showed large local variances (in red). Moreover, intermediate values of local variance were obtained in the central portion of the site. Similar observations were made from the map of exceedance probability. In general, sectors presenting the largest values of variance and exceedance probability were characterized by the proximity of strong MPI values (red dots, see Figure 5.2).

In some locations on the site, the probability of exceeding threshold C was 0.4 (i.e. at that location, the simulated MPI values for 40% of the 100 realizations were larger than 3), while observed concentrations exceeding threshold C (red dots) were in the vicinity. Such local discrepancies between the exceedance probability of a threshold and the data observed were explained by strong local variances, even at distances smaller than 0.3 m with observed data. The variogram was characterized by a large nugget effect (i.e. nugget-to-sill ratio equal to 0.23), which can lead to a relatively large variability between the simulated values from one realization to another for a given unit. In addition, observed concentrations larger than threshold C were, in general, only slightly larger than this threshold. This lead, for many simulated units, to intermediate exceedance probabilities between 0.3 and 0.7. Thus, for all of the data used in this study, which were characterized by MPI values very close to the C threshold and by a strong nugget effect, the exceedance probability was very rarely close to 1.0 even if concentrations larger than threshold C were observed.

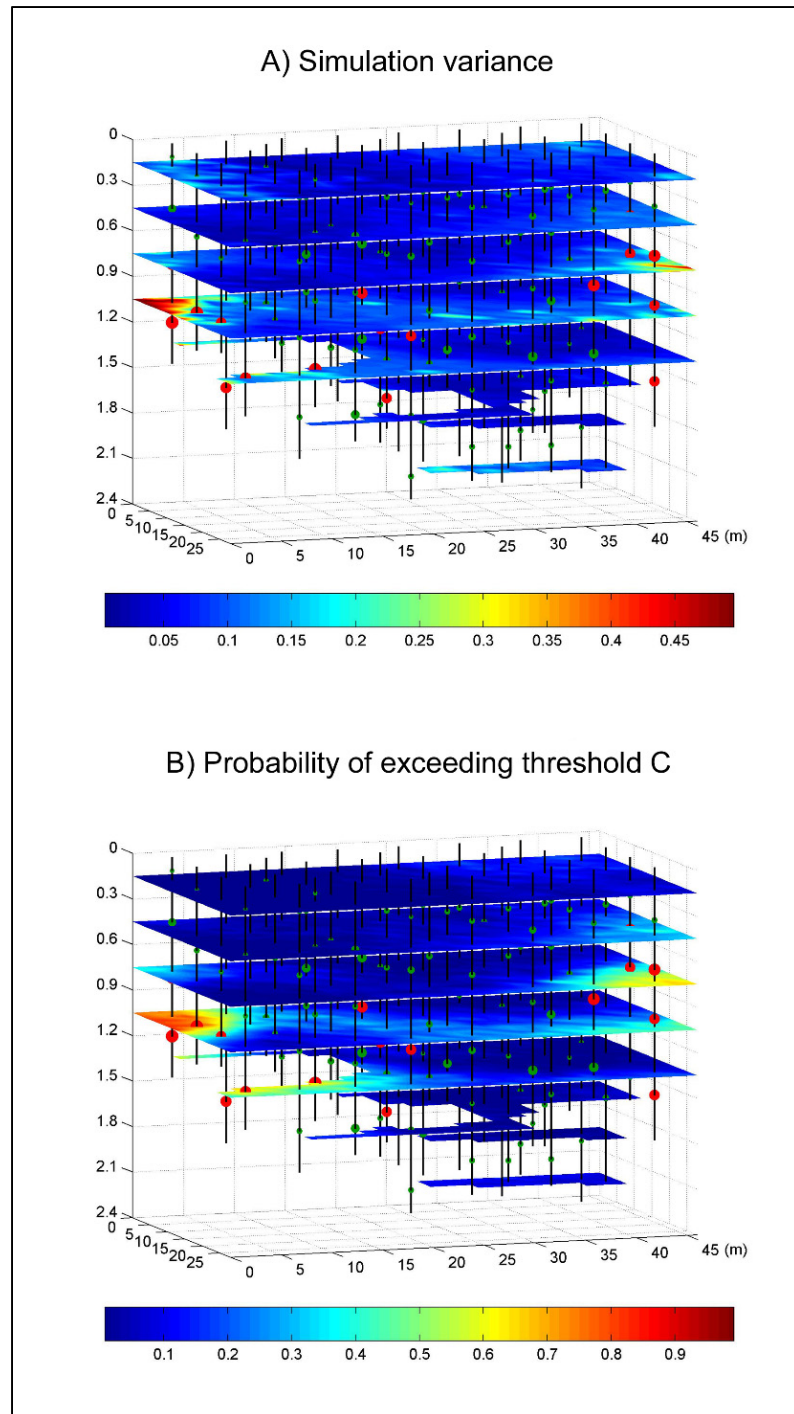


Figure 5.6 3-D mapping of A) simulation variance and B) probability of exceeding threshold C for 100 conditional simulations from the complete dataset (i.e. 38 sampling stations)

5.3.4 Bounds α and β

Tables 5.3 to 5.5 present the result from a sensitivity analysis on the influence of bounds α and β on the categorization of the soil volumes (see section 5.2.2.5). This sensitivity analysis was performed with the results obtained from all sampling stations (i.e. 38 sampling stations).

Table 5.3 presents a sensitivity analysis of the low-risk volume as a function of bound α . As aforementioned, bound α was defined for $\bar{P}(\alpha) \leq 0.05$ (see Equation (5.14) for a threshold $S = 3$). Thus, according to Table 5.3, a value of 0.15 was chosen for parameter α , value for which 4.7% of the simulated points have a MPI value higher than 3 and an exceedance probability lower than 0.15.

Table 5.3 Sensitivity analysis of the low-risk volume in relation to bound α and to the probability $\bar{P}(\alpha)$ (with the total set)

Bound α	Low-risk volume V_{lr} (m^3)	V_{lr}/V_{tot} ratio (%)	$\bar{P}(\alpha)$
0.05	1000	44%	1.7%
0.10	1510	66%	3.3%
0.15	1710	75%	4.7%
0.20	1880	82%	5.6%
0.25	1960	86%	6.6%
0.30	2060	90%	7.4%

Table 5.4 presents a sensitivity analysis of the volume to be treated as a function of bound β . As previously indicated, bound β was defined by a volume to be treated, V_{tr} , included in the confidence interval on the volume of soil for which the simulated value were larger than

threshold C (obtained from the distribution of the K volumes). This confidence interval was determined by conditional simulations as $[200, 343] \text{ m}^3$. Thus, according to Table 5.4, $\beta = 0.3$ corresponded to a V_{tr} between 200 and 343 m^3 .

Table 5.4 Sensitivity analysis of the volume to be treated in relation to bound β
(with the total set)

Bound β	Volume to be treated V_{tr} (m^3)	$V_{\text{tr}}/V_{\text{tot}}$ ratio (%)
0.1	780	34%
0.2	410	18%
0.3	220	9.6%
0.4	150	6.6%
0.5	97.1	4.2%
0.6	54.7	2.4%
0.7	20.5	0.9%
0.8	3.6	0.2%
0.9	0	0%
1.0	0	0%

Table 5.5 presents a sensitivity analysis of the uncertain volume according to bounds α and β . For $\alpha = 0.15$ and $\beta = 0.3$, the uncertain volume V_{unc} was 355 m^3 , which represented 16% of the total volume of the site. It should be noted that the uncertain volume varied very slightly when $\beta \geq 0.8$, since there was only a small number of exceedance probability values greater than 0.8 (in red on Figure 5.6B). Also, for β between 0.1 and 0.4, large variations of the uncertain volume were observed. However, V_{tr} decreased rapidly with an increase of β from 0.4 to 0.8 (see Table 5.4).

Table 5.5 Sensitivity analysis of the uncertain volume in relation to bound α and β (with the total set)

Bound α	Uncertain volume V_{unc} (m^3)									
	$\beta = 0.1$	$\beta = 0.2$	$\beta = 0.3$	$\beta = 0.4$	$\beta = 0.5$	$\beta = 0.6$	$\beta = 0.7$	$\beta = 0.8$	$\beta = 0.9$	$\beta = 1.0$
0	1510	1870	2070	2140	2190	2230	2260	2280	2290	2290
0.05	510	876	1070	1140	1190	1230	1270	1280	1290	1290
0.10	0	365	557	628	680	723	757	774	777	777
0.15	-	162	355	425	477	520	554	571	575	575
0.20	-	0	192	263	315	358	392	409	412	412
0.25	-	-	101	171	224	266	300	317	321	321
0.30	-	-	0	70.7	123	166	200	217	220	220

Interestingly, the method developed to determine bounds α and β can adapt the value of these bounds to the heterogeneity of a site. For instance, since the study site had a large nugget effect and observed data that slightly exceeded threshold C, bound β value had to take on a smaller value than the arbitrary values reported by other authors, i.e. 0.8 or 0.6 in Demougeot-Renard et al. (2004) as well as Verstraete and Meirvenne (2008). Note, however, that bound α was similar to the value suggested by these authors (i.e. 0.2).

5.3.5 Optimization of the sampling plan and quantification and minimization of the uncertainty

Conditional simulations were first performed with the initial subset (i.e. with 8 sampling stations). Figure 5.7A shows the maps obtained from the initial subset. The categorization of the site in the three types of soil volume (V_{lr} , V_{unc} and V_{tr}), according to bounds α and β defined previously, is presented in three distinct colors on the exceedance probability map (see top left of Figure 5.7).

In the initial subset of 8 sampling stations, concentrations at 27 sampling points were available. Of the 27 MPI values, only three exceeded threshold C. The simulation variance was also larger in the vicinity of these three sampling points (see bottom left of Figure 5.7A).

In order to determine the optimal number of sampling stations, the global uncertainty was calculated at each step of the optimization. The evolution of the global uncertainty was monitored as presented in blue in Figure 5.8. For all steps of the optimization, the value of the global uncertainty varied between 14% and 31%, for a final value slightly under 16% (i.e. taking into account the 38 sampling stations). Obviously, the amplitude of the variations of global uncertainty between steps of optimization was larger for the first optimization steps (i.e. for sampling plans with 8 to 15 sampling stations). For sampling plans with 16 to 19 sampling stations, the global uncertainty showed slight variations (apparent plateau on the graph). Starting from 19 sampling stations, the global uncertainty decreased slightly and stayed below 20%. Similar observations can be made about the evolution of the global variance (in black in Figure 5.8). The evolution of the global variance showed large variations for sampling plans with less than 14 sampling stations. An apparent plateau can be observed between 14 and 16 sampling stations. From 16 to 22 sampling stations, the global variance decreased continuously, and remained below 0.08 from sampling plans with more than 20 sampling stations.

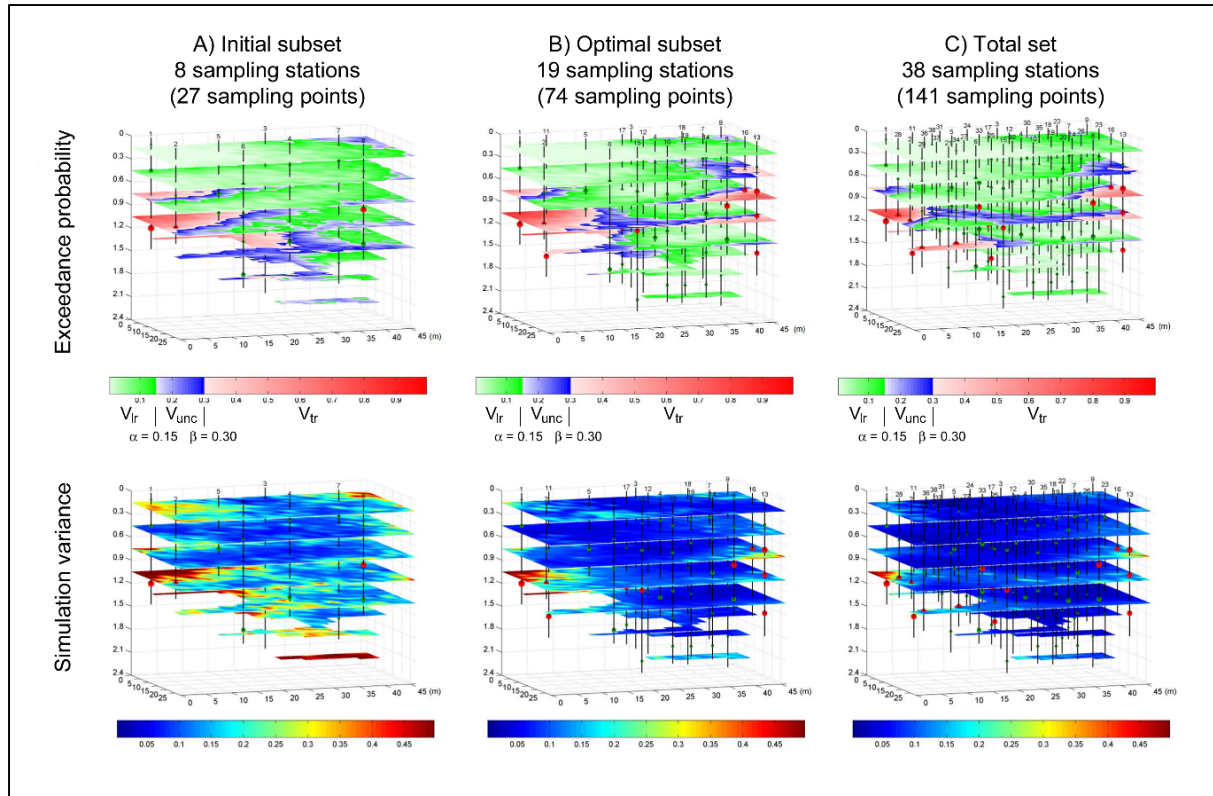


Figure 5.7 3-D Maps of exceedance probabilities (top) and simulation variance (bottom) for A) initial subset of 8 sampling stations (left), B) optimal subset of 19 sampling stations (middle) and C) total set of 38 sampling stations (right)

The relative difference was also calculated between each step of the optimization for the global uncertainty and the global variance. Its evolution for both parameters is presented in Figure 5.9 (global uncertainty in blue and global variance in black). When the number of sampling stations was 15 or more, the relative differences of the global uncertainty and global variance remained below 17% and 10% respectively. However, for less than 15 sampling stations, they reached values larger than 40% and 20% respectively.

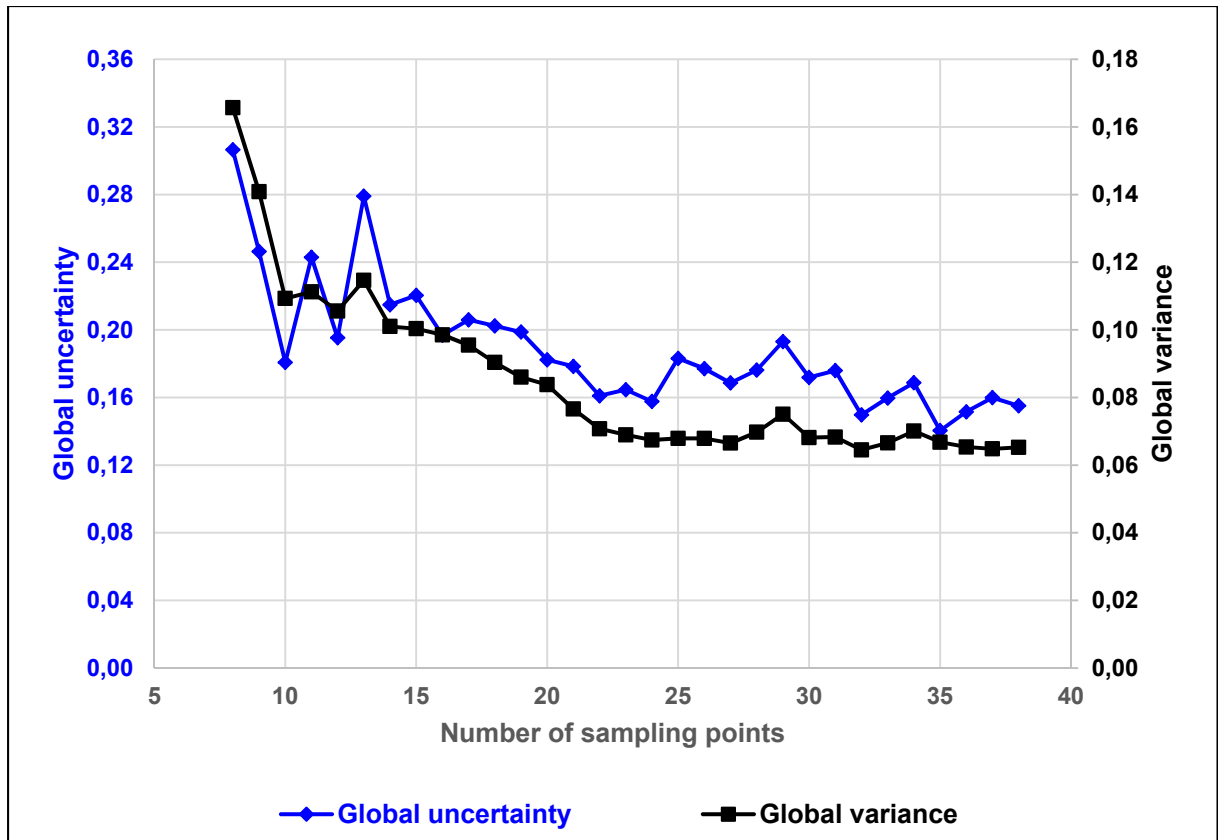


Figure 5.8 Evolution of the global uncertainty (in blue) and the global variance (in black) for each step of optimization

Fifteen (15) sampling stations was the first local minimum of relative differences in the global uncertainty and the global variance. In the context of a real environmental site assessment, determining the stability of a sampling plan may be done according to a convergence (or stability) criteria. In this study, stability was defined by three successive optimization steps having relative differences smaller than 10%. In the present case, the relative differences for sampling plans with 17, 18 and 19 sampling stations were under 5%.

It should be noted that some relative differences are greater than 10% for sampling plans with 25 sampling stations or more. These variations are related to random fluctuations in the distribution of data caused by the additional sampling points. For example, the station chosen on the 25th step adds an isolated contaminated point located deep in the field. This additional

point has a strong local impact on the threshold exceedance probability, hence on the uncertain volume (V_{unc}) and the global uncertainty.

Even if these relative differences for the global uncertainty were greater than 10% for sampling plans with more than 19 samplings stations, the first three successive optimization steps having relative differences smaller than 10% was used to report the achievement of stability. It should be noted that the global uncertainty for 19 sampling stations was very similar to the maximum global uncertainty calculated for the sampling plan with more than 20 sampling stations (see Figure 5.8). Thus, in this study, the optimal number of sampling stations was determined to be 19 when stability for both global uncertainty and global variance values was obtained.

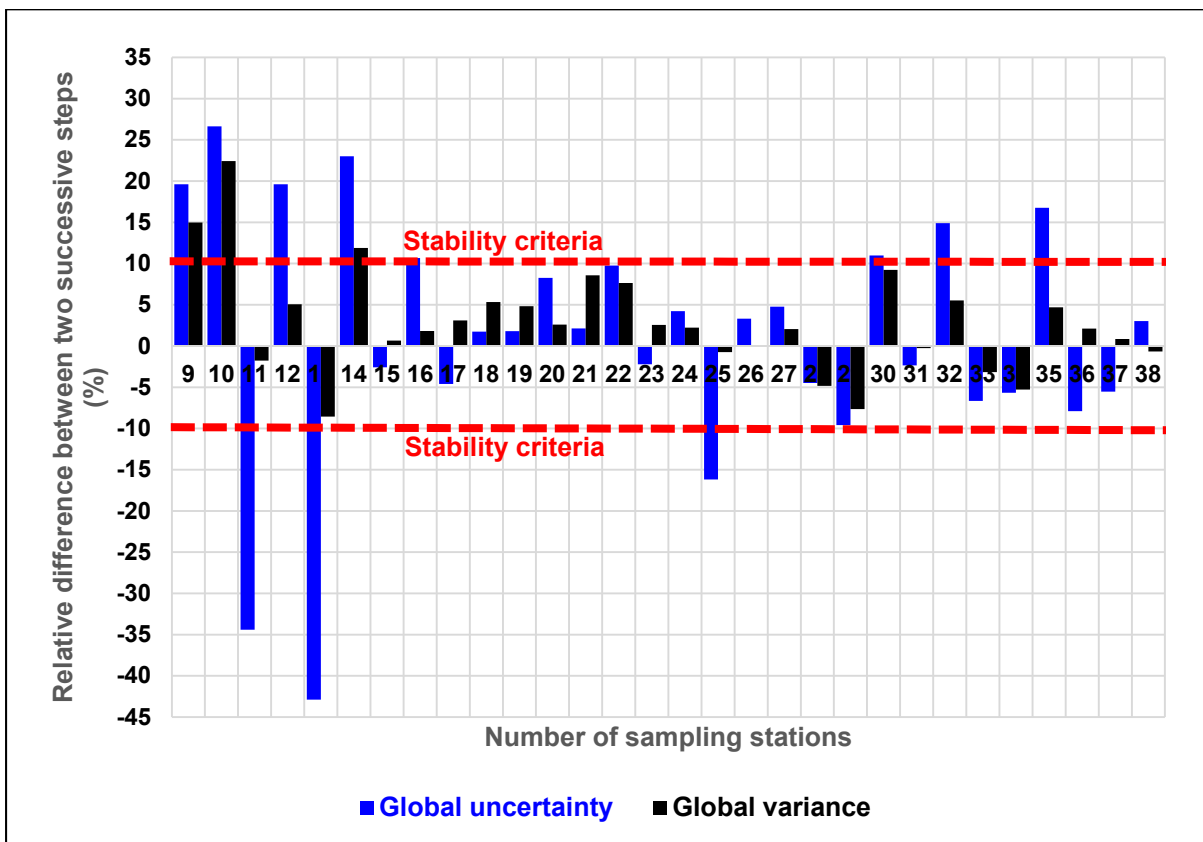


Figure 5.9 Evolution of the relative difference of the global uncertainty (in blue) and the global variance (in black) between two successive steps

The maps of exceedance probability of threshold C and the simulation variances are presented in Figure 5.7 for 8 (initial subset), 19 (optimal subset) and 38 sampling stations (total set).

First, in order to comment on the choice of bounds α and β , the compilation of the known data MPIs (real values measured at the sampling points) larger than 3 (threshold C) was performed according to the categorization of soil. This compilation is shown in Table 5.6. For each sampling plan shown in Figure 5.7, the known MPIs (i.e. from measured concentrations) larger than 3 (points in red in Figure 5.7) were all located in the V_{tr} (exceedance probability in red) or in the V_{unc} (exceedance probability in blue). More specifically, the proportions of known MPIs that were both larger than 3 and located in V_{tr} were respectively 67%, 82% and 75% for 8, 19 and 38 sampling stations. Thus, the choice of bound β led to a categorization of soil that was consistent with known MPIs, i.e. observed data. In other words, the 0.3 value for bound β ensured that, in most cases for the study site, a specific unit of soil would have been considered larger than threshold C when a known data located in the vicinity of this unit was larger than threshold C. Moreover, bound α was small enough to prevent any known MPI larger than threshold C to be located in the low-risk volume V_{lr} .

The map of exceedance probability obtained from 8 sampling stations showed a considerable gap with the one obtained with all of the sampling stations (i.e. 38 sampling stations). This map presented a significant volume in blue (uncertain volume) and a volume in red at only one extremity of the study site. In addition, the map of simulation variances for the initial subset showed several locations with a very large variance (i.e. in red, values larger than 0.5). For the optimal set with 19 sampling stations, both maps of exceedance probability and simulation variances were similar to the one obtained with all the data (i.e. total set).

Finally, according to the procedure proposed, a sampling plan could be considered optimized and complete at 19 sampling stations for this study site. For this number of sampling stations, the V_{tr} of contaminated soil (i.e. over threshold C) was estimated at 355 m³ compared to 225 m³ for 38 sampling stations (see Table 5.7). A value for the global uncertainty can also be given to the optimal subset by calculating the ratio between the V_{unc} and the total volume. Therefore, a global uncertainty of 20% ($V_{unc} = 455$ m³) was calculated for the optimal sampling plan with 19 sampling stations (i.e. 74 sampling points). For 38 sampling stations (i.e. 141 sampling points), the global uncertainty could be reduced to 16% ($V_{unc} = 355$ m³, see Table 5.7).

Table 5.6 Compilation of the known data larger than 3 (i.e. threshold C) in relation to the categorization of soil

Sampling plan	Total number of known data	Number of known data superior to threshold C			
		Total	In Volume to be treated V_{tr}	In Uncertain Volume V_{unc}	In Low-risk Volume V_{lr}
Initial (8 sampling stations)	27	3	2	1	0
Optimal (19 sampling stations)	74	11	9	2	0
Total (38 sampling stations)	141	20	15	5	0

Table 5.7 Calculated volume for initial subset, optimal subset and total set and the global uncertainty and variance associated with these sampling plans
(number of sampling stations in parentheses)

Sampling plan	Total number of known data MPIs	Low-risk volume V_{lr} (m ³)	Uncertain volume V_{unc} (m ³)	Volume to be treated V_{tr} (m ³)	Global uncertainty (%)	Global variance (dimensionless)
Initial (8)	27	1270	700	320	31%	0.17
Optimal (19)	74	1480	455	355	20%	0.09
Total (38)	141	1710	355	225	16%	0.07

5.4 Conclusions

In this study, a geostatistical procedure based on conditional simulations was developed to optimize the location and the number of sampling stations during a complementary sampling campaign, to estimate the volume of contaminated soil for a given data set and to quantify the uncertainty of this estimate.

The developed geostatistical procedure is novel because:

- 1) it takes into account the presence of multi-element contamination by a transformation of concentrations into pollution indices;
- 2) it optimizes 3-D sampling plans;
- 3) it categorizes the soil according to the probability of exceeding regulatory thresholds using a formal framework that adapts the bounds of soil categories to site-specific characteristics of the contamination.

Moreover, in the context of the optimization of a sampling plan, the developed procedure allows to determine the location of the supplemental sampling stations in the uncertain volume with three predetermined criteria: the probability of exceeding regulatory thresholds, the simulation variances and the closest distance to a sampling station.

The developed procedure was applied to an urban site characterized by the presence of a strongly heterogeneous fill. For this study site, the procedure indicated that the sampling plan was complete and the global uncertainty and global variance were stable at 19 sampling stations, compared to the 38 stations of the total sampling plan obtained from systematic sampling. Moreover, the 11 sampling stations, added to the initial 8 stations to reach a complete sampling plan, were located in zone of larger uncertainty and variability, instead of along a fixed grid, which helped in efficiently stabilizing the global uncertainty and variance.

The developed geostatistical procedure does not only optimize the resources (time and money) invested for the characterization of a contaminated site but it quantifies the global uncertainty tied to a specific sampling plan, which is a crucial information for the decision-making process leading the remediation of a site.

Supplemental research will be done to apply the developed geostatistical procedure on other sites that present different characteristics, especially with a larger dataset that allows to determine a constant variogram with an initial subset. Also, complementary studies will be necessary to integrate other contaminants, such as polycyclic aromatic hydrocarbons, which are common on urban sites. Moreover, a sensitivity analysis should be integrated to the

developed procedure to take into account the uncertainty on the fitted variogram models and its influence on the soil categorization.

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge the financial support of the National Science and Engineering Research Council (NSERC) of Canada to this project through a Cooperative Research and Development grant to Professor Dubé (grant number CRDPJ 355151 – 07). This grant also included financial and in-kind support from Groupe Qualitas inc. during field works.

CHAPITRE 6

DISCUSSION GÉNÉRALE ET CONTRIBUTIONS DE LA RECHERCHE

6.1 Caractérisation de la géométrie physique interne : retour sur l'article 1

L'article 1 a présenté une application exhaustive d'une approche multi-méthodes par géophysique de la caractérisation de l'hétérogénéité physique du site à l'étude. L'approche développée, basée sur quatre méthodes géophysiques (c.-à-d. EM, MAG, GPR et ERI) et l'interprétation croisée des résultats, a notamment permis de :

- valider la présence et la nature d'anomalies dans un remblai urbain,
- déterminer la corrélation entre la proportion de débris et les réponses géophysiques,
- déterminer le contact stratigraphique entre le remblai et le sol naturel sous-jacent,
- sectoriser le site en zones d'hétérogénéités distinctes à la fois sur le plan horizontal et sur le plan vertical,
- améliorer la schématisation de la structure, tant verticale qu'horizontale, de l'hétérogénéité physique du remblai urbain.

Des profils géophysiques ont aussi été comparés avec le profil stratigraphique tracé à partir d'une caractérisation conventionnelle (densité conventionnelle d'échantillonnage, soit un espacement des stations d'échantillonnage de l'ordre de 15 à 25 mètres) et celui obtenu suite à une caractérisation complémentaire comportant une forte densité d'échantillonnage (c.-à-d. un espacement de l'ordre de 6 à 7 mètres dans la présente étude) (voir figure 3.7). Cette comparaison a permis de démontrer l'apport avantageux d'une auscultation géophysique et de sa caractérisation « pratiquement continue » de l'hétérogénéité physique. Cette comparaison avec une approche conventionnelle de caractérisation a permis de mettre en évidence qu'un espacement conventionnel d'échantillonnage peut mener à l'élaboration d'un modèle conceptuel du site erroné et infidèle de l'hétérogénéité du site investigué.

En complément à une revue de l'historique d'un site (étude de phase I), une approche multi-méthodes de caractérisation géophysique d'un site permettrait non seulement de rendre plus juste le modèle conceptuel d'un site, mais également d'optimiser une campagne d'échantillonnage. Pour le site à l'étude et puisque la superposition du contact stratigraphique de l'interface remblai/sol naturel et des zones à fortes proportions de débris (voir le pointillé à la figure 3.7B) avec les profils géophysiques GPR et ERI démontrent une bonne concordance, il aurait été possible de réduire le nombre de stations d'échantillonnage supplémentaires sans réduire la justesse du modèle conceptuel du site. Une stratégie d'échantillonnage stratifié et ciblé, autant sur le plan horizontal que sur le plan vertical, aurait pu être utilisée dans chaque secteur catégorisé d'hétérogénéité distincte suivant les résultats géophysiques.

D'un point de vue économique, il est certain qu'une auscultation géophysique augmente les coûts directs des travaux de caractérisation sur le terrain. Toutefois, pour certains sites présentant une hétérogénéité complexe (ce qui est relativement fréquent pour les sites urbains contaminés), les études conventionnelles comportent de multiples phases de caractérisation complémentaire menant à l'ajout itératif d'un nombre additionnel de stations d'échantillonnage. En tenant compte de l'ensemble des coûts cumulés de ces multiples études conventionnelles itératives et de la possibilité d'optimiser une campagne d'échantillonnage selon les résultats géophysiques, la différence de coûts investis en caractérisation serait probablement très minime en comparaison avec une approche optimisée intégrant une auscultation géophysique multi-méthodes.

De plus, une caractérisation pratiquement continue de l'hétérogénéité du site par une auscultation géophysique multi-méthodes permet de diminuer, voire d'éliminer, les risques qu'une zone présentant des caractéristiques physiques particulières (p. ex. la présence d'un réservoir enfoui) demeure non détectée. Puisque la non-détection d'une zone particulière (ce qui est très fréquent dans une approche conventionnelle) affecte très souvent les coûts de réhabilitation d'un site, la méthode développée permettrait ainsi un meilleur contrôle du budget estimé et du budget de contingences devant être prévus dans les étapes subséquentes

d'un projet de réhabilitation d'un site urbain contaminé. Bien que le risque lié à la non-détection d'une zone particulière ne soit pas quantifiable, ce risque demeure fortement réduit suite à une auscultation géophysique multi-méthodes, ce qui permet donc d'assurer un contrôle « qualitatif » de l'incertitude globale au sein du processus de caractérisation d'un site contaminé.

6.1.1 Résultats complémentaires potentiels

Globalement, l'approche développée a permis de rencontrer les objectifs fixés pour la présente recherche, soit de caractériser la géométrie physique interne du sol 1) par une description de façon pratiquement continue et 2) par une évaluation du gain de cette description de l'hétérogénéité physique par rapport à une caractérisation conventionnelle basée sur des résultats ponctuels.

La démonstration sur le site à l'étude de l'approche développée a permis de mettre en évidence l'importance de la caractérisation de l'hétérogénéité physique, à l'échelle du terrain, de façon pratiquement continue. Cette démonstration pourrait non seulement servir dans l'élaboration d'une stratégie optimisée d'échantillonnage, mais également pour d'autres applications connexes. En outre de ce qui a été décrit à la section précédente, l'approche multi-méthodes de caractérisation géophysique pourrait permettre, par exemple, de :

- conditionner un traitement géostatistique (p. ex. par cokrigage) visant à estimer le volume de remblai d'un site urbain contaminé en se servant du contact stratigraphique de l'interface remblai/sol naturel déterminé de manière pratiquement continue par géophysique;
- conditionner un traitement géostatistique (p. ex. par cokrigage) visant à estimer la proportion de débris de démolition pouvant être ségréguée du sol afin d'optimiser la gestion des matériaux excavés lors de la réhabilitation et ainsi de limiter les coûts de décontamination des sols;

- conditionner l'élaboration d'un modèle conceptuel fiable du site en trois dimensions en vue de modéliser l'écoulement hydrodynamique au sein d'un site urbain contaminé;
- conditionner l'élaboration d'un modèle conceptuel fiable du site en trois dimensions en vue de modéliser l'efficacité d'un traitement de décontamination *in situ* (p. ex. l'oxydation chimique) au sein d'un site urbain contaminé.

Ces applications pourraient ainsi faire l'objet de travaux de recherche complémentaires à la présente thèse doctorale.

6.2 Caractérisation de la représentativité de l'échantillonnage : retour sur l'article 2

L'article 2 a présenté une application formelle et exhaustive, sur le site à l'étude, d'une procédure d'échantillonnage représentatif qui a été développée en se basant sur les fondements de la TEMM, à la fois au niveau qualitatif et quantitatif de cette théorie, et spécifique aux sites urbains contaminés. La procédure développée a notamment permis de :

- démontrer la pertinence de l'utilisation de la TEMM dans le domaine de l'échantillonnage des sols contaminés;
- quantifier la reproductibilité d'un échantillonnage et ce, pour chacune de ses sous-étapes (c.-à-d. du terrain jusqu'à l'analyse en laboratoire);
- déterminer les sous-étapes d'échantillonnage qui engendrent la plus grande perte en reproductibilité (dans la présente étude, près de 84% de la variance relative est engendré par l'échantillonnage sur le terrain);
- valider que la variance analytique est minime par rapport à la variance engendrée lors de l'échantillonnage (dans la présente étude, près de 99% de la variance relative est engendré lors de l'échantillonnage, seulement 1% est lié à la variance relative de l'analyse chimique);
- comparer la variance théorique d'une procédure d'échantillonnage à partir de l'équation de l'erreur fondamentale de la TEMM avec la variance expérimentale;

- mettre en évidence que l'utilisation d'un facteur de libération égal à 1 n'est pas adapté au contexte des sols contaminés contrairement à ce qui a été recommandé dans certains guides (p. ex. Gerlach et Nocerino, 2003).

La procédure développée a aussi été comparée à la procédure conventionnelle répandue dans la pratique qui consiste à effectuer l'échantillonnage par grappillage. Le gain moyen en amélioration de la reproductibilité a été évalué à un facteur de l'ordre de 10 pour la procédure développée comparativement à un échantillonnage par grappillage. Ce gain atteint même un facteur (ratio entre la variance relative d'une procédure d'échantillonnage par grappillage et celle de la méthode développée) de 15 et 19 pour certains éléments, tels le plomb et le manganèse.

L'impact de cette reproductibilité a été également présenté à la figure 4.3 en termes de probabilité d'erreur de classification (p. ex. de considérer un échantillon non contaminé alors qu'en réalité il l'est ou inversement). Dans l'exemple présenté à cette figure, la probabilité de se tromper est de l'ordre de 2% avec la procédure développée comparativement à près de 30% pour l'échantillonnage par grappillage même lorsque la concentration moyenne (dans l'exemple, cette concentration est égale à 1500 mg/kg) est relativement loin de la valeur-seuil réglementaire (1000 mg/kg dans l'exemple). Le grappillage peut ainsi mener à une prise de décision erronée en ce qui a trait à la classification du niveau de contamination d'un échantillon, pouvant de ce fait entraîner des impacts considérables dans un projet de caractérisation et/ou de réhabilitation d'un site contaminé. Entre autres, la mauvaise classification d'un échantillon (ou de la parcelle de terrain où il est supposé être « représentatif ») peut se traduire en risques professionnels et environnementaux si un échantillon est considéré non contaminé alors qu'il l'est en réalité et en surcoûts non justifiés et inutiles lorsque l'échantillon est considéré contaminé alors qu'il ne l'est pas en réalité.

Par ailleurs, une procédure d'échantillonnage de mauvaise qualité (c.-à-d. de faible reproductibilité) induit des problèmes de prise de décision à différentes étapes d'un projet de caractérisation et de réhabilitation puisque une même parcelle de terrain peut faire l'objet

d'échantillonnage successif (p. ex. de contrôle et de validation) en cours de projet. Par exemple, une procédure d'échantillonnage de mauvaise qualité pourrait amener des intervenants à conclure à l'inefficacité d'une technique de décontamination alors qu'en réalité, une hausse observée de la concentration mesurée dans un échantillon pourrait simplement être attribuée à des erreurs d'échantillonnage et à la reproductibilité de la procédure d'échantillonnage appliquée.

Bien que des surcoûts potentiels soient liés à l'application de la procédure d'échantillonnage développée comparativement à un échantillonnage par grappillage, l'obtention de données de qualité est primordiale dans le contexte des sites urbains contaminés puisque toute prise de décision en vue d'obtenir des solutions optimales et justes repose sur ces données. Bien que les erreurs d'échantillonnage se répercutent lors de la quantification des incertitudes locales et globales liées à un plan d'échantillonnage par géostatistique (voir impact sur la détermination d'une structure de contamination présenté à la section 6.5.2), l'obtention de données de qualité permet d'assurer, au préalable, un contrôle « qualitatif » de l'incertitude globale au sein du processus de caractérisation d'un site contaminé. Toutefois, la quantification de la reproductibilité d'une procédure d'échantillonnage permet aussi un contrôle « quantitatif » de l'incertitude à l'échelle de l'échantillon.

6.2.1 Résultats complémentaires potentiels

L'approche développée a permis de rencontrer les objectifs fixés, soit de caractériser la représentativité des échantillons de sol 1) par la détermination des paramètres influençant la représentativité, 2) par le développement d'une procédure d'échantillonnage adaptée au contexte des sites urbains contaminés qui permet d'améliorer la représentativité des échantillons de sols et 3) par la quantification du gain en représentativité de la procédure développée par rapport à la pratique actuelle en matière d'échantillonnage environnemental des sols.

L'approche développée a permis de mettre en évidence l'importance de la caractérisation de l'hétérogénéité, à l'échelle de l'échantillon, afin d'obtenir des données représentatives, justes et fiables permettant une prise de décision éclairée. En complément à ce qui a été énoncé précédemment, l'approche développée de caractérisation de la représentativité de l'échantillonnage pourrait permettre, par exemple, de :

- guider le développement d'autres procédures d'échantillonnage selon les particularités spécifiques d'un projet (p. ex. une procédure nécessitant une reproductibilité meilleure que celle de la procédure développée ou à l'inverse);
- évaluer la représentativité de toute autre procédure d'échantillonnage;
- évaluer l'utilisation d'une autre technique de réduction de masse sur le terrain (p. ex. avec un séparateur rotatif de grande dimension) et son impact sur la reproductibilité de l'échantillonnage;
- guider le développement d'une équation de l'erreur fondamentale adaptée au contexte des sols contaminés;
- guider le développement d'un cadre décisionnel de classification du niveau de contamination des sols basé sur la représentativité d'une procédure d'échantillonnage.

Ceci pourrait ainsi faire l'objet de travaux de recherche complémentaires à la présente thèse doctorale.

6.3 Caractérisation de la distribution spatiale de la contamination : retour sur l'article 3

L'article 3 a présenté une procédure géostatistique développée pour une contamination multi-éléments en trois dimensions visant à assurer le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation d'un site urbain contaminé. La procédure développée, appliquée au site à l'étude, a notamment permis de :

- déterminer la structure spatiale d'une contamination par une analyse variographique en trois dimensions;
- valider l'utilisation d'une méthode simple et pratique afin de tenir compte de la présence d'une contamination multi-éléments;
- estimer les volumes de sols contaminés et de quantifier l'incertitude sur ces estimations comparativement à la méthode polygonale qui ne permet pas la quantification de l'incertitude sur les estimations;
- permettre la quantification à la fois de l'incertitude locale (c.-à-d. la probabilité de dépassement d'un seuil réglementaire à un endroit donné) et de l'incertitude globale (c.-à-d. sur l'ensemble d'un site) spécifique à un plan d'échantillonnage donné;
- optimiser l'emplacement et le nombre de stations d'échantillonnage durant des phases complémentaires de caractérisation suivant un algorithme rationnel;
- adapter la prise de décision quant à la catégorisation du site (c.-à-d. en volume à traiter, volume incertain et volume à faible risque) aux caractéristiques spécifiques d'un site et son hétérogénéité (de permettre, entre autres, l'ajustement des bornes α et β à chaque site en fonction de critères universels prédéterminés);
- déterminer l'atteinte de stabilité dans un plan d'échantillonnage optimisé tout en répondant au niveau d'incertitude fixé pour un projet.

L'approche développée a permis également de faire un choix rationnel et optimal en ce qui concerne l'emplacement des stations d'échantillonnage additionnelles pouvant compléter un plan d'échantillonnage donné en vue de diminuer, avec un minimum de données supplémentaires, l'incertitude globale lui étant associée. La démonstration de cette optimisation a été effectuée à partir d'un ensemble de données représentatives du site à l'étude et obtenues durant les travaux de l'article 2. À partir d'un sous-ensemble initial dont les stations d'échantillonnage ont été localisées selon les résultats des travaux de l'article 1 (en fonction des zones d'hétérogénéités distinctes soulignées par l'auscultation géophysique, voir section 6.5.1 pour un complément à ce sujet), cette procédure d'optimisation de la stratégie d'échantillonnage a simulé l'ajout progressif de données suivant l'algorithme

développé. Durant les différentes phases itératives, les incertitudes locales et globales ont été quantifiées afin de permettre un suivi de la progression de l'incertitude et la détermination de l'atteinte de la stabilité du plan d'échantillonnage.

L'approche développée a permis, par ailleurs, de démontrer qu'un plan d'échantillonnage pour lequel l'emplacement des stations d'échantillonnage a été optimisé peut présenter une incertitude globale comparable à celui constitué d'un plus grand nombre de stations d'échantillonnage répartis sur une grille systématique dense. Pour le site à l'étude, il a été trouvé que l'incertitude globale associée au plan d'échantillonnage optimisé avec 19 stations d'échantillonnage s'avère comparable à celle associée au plan d'échantillonnage avec la totalité des données, soit les 38 stations d'échantillonnage.

En plus d'optimiser les ressources (p. ex. le temps et l'argent) devant être investies lors d'une caractérisation, l'approche développée permet de quantifier l'incertitude sur les estimations, ce qui devient une information cruciale pour une prise de décision éclairée par les intervenants impliqués dans un projet de caractérisation et de réhabilitation d'un site urbain contaminé.

Bien qu'un traitement géostatistique puisse entraîner des coûts supplémentaires en ce qui a trait aux honoraires professionnels liés à un projet, ceux-ci pourraient probablement être compensés par l'obtention d'un portrait aussi fiable (p. ex. d'incertitude comparable) voire meilleur de la distribution spatiale de la contamination avec un plan d'échantillonnage optimisé comportant un nombre restreint de stations d'échantillonnage. En effet, les coûts liés aux travaux de terrain, aux travaux d'échantillonnage et aux analyses chimiques pourraient ainsi être moindres avec une approche optimisée comparativement à l'approche conventionnelle.

Ainsi, la procédure géostatistique permet d'apporter un cadre global qui assure un contrôle « quantitatif » de l'incertitude globale au sein du processus de caractérisation d'un site contaminé. Ce contrôle quantitatif débute par une quantification de l'incertitude locale

associée à un point de prélèvement puis par une quantification globale liée à un plan d'échantillonnage. Par la suite, l'optimisation du plan d'échantillonnage permet de compléter le contrôle de cette incertitude globale par sa réduction suivant l'ajout optimisé de données supplémentaires jusqu'à une valeur tolérée ou l'atteinte de sa stabilité.

6.3.1 Résultats complémentaires potentiels

L'approche géostatistique développée a permis de rencontrer les objectifs fixés, soit de caractériser la distribution spatiale de la contamination 1) par la détermination de la structure spatiale de la contamination d'un site urbain contaminé, 2) par l'estimation du niveau de contamination localement sur le site en tenant compte de la structure spatiale présente et 3) par la quantification, autant localement que globalement, de l'incertitude associée à ces estimations.

L'approche développée a permis de mettre en évidence l'importance de la caractérisation de l'hétérogénéité, à l'échelle du terrain, d'une contamination et de sa distribution spatiale afin de permettre le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation environnementale d'un site urbain contaminé. En plus de permettre l'optimisation d'un plan d'échantillonnage, l'approche développée de caractérisation de la distribution spatiale de la contamination pourrait permettre, par exemple, de :

- compléter, par l'ajout de la distribution spatiale de la contamination, l'élaboration d'un modèle conceptuel fiable du site en trois dimensions, basé notamment sur les résultats d'une auscultation géophysique, en vue de modéliser le transport de contaminant au sein d'un site urbain contaminé;
- optimiser un traitement de décontamination suivant une meilleure connaissance de la distribution spatiale de la contamination;
- servir d'appui à toute étude statistique requise dans le cadre d'une évaluation des risques toxicologiques et écotoxicologiques que pourraient présenter un site urbain contaminé;

- optimiser une stratégie d'excavation d'un site urbain contaminé par la détermination de la taille optimale des cellules ou polygones d'intervention.

Par ailleurs, bien que l'approche développée soit orientée sur la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination, une approche géostatistique très similaire pourrait être appliquée à d'autres domaines, tels que la géotechnique pour la distribution spatiale d'une propriété mécanique du sol (p. ex. la compacité par la mesure des indices N obtenus ponctuellement).

Ces applications pourraient ainsi faire l'objet de travaux de recherche complémentaires à la présente thèse doctorale.

6.4 Discussion globale sur la caractérisation de l'hétérogénéité

Les sites urbains contaminés, tout particulièrement les remblais urbains hétérogènes, sont souvent perçus comme des sites dépourvus de structure spatiale. Dans le langage courant, on qualifie souvent leur contamination d'« imprévisible », voulant exprimer le fait qu'il soit très difficile de les caractériser avec un niveau adéquat de certitude, même en y ajoutant des stations d'échantillonnage supplémentaires. En effet, il arrive trop souvent que l'ajout de stations d'échantillonnage supplémentaires vienne apporter une certaine confusion quant au portrait schématique du site que les intervenants se dressent au fil des travaux de terrain. Cette confusion découle, par exemple, du fait que les propriétés physiques ou chimiques des sols nouvellement caractérisés ne confirment pas ce qui était attendu. Il devient alors très difficile de prendre une décision éclairée, ne serait-ce que pour déterminer seulement le niveau de contamination localement d'une parcelle du site. Dans d'autres cas, il arrive même que le niveau de contamination d'un seul et même échantillon (de l'ordre de 300 grammes!) soit très difficile à déterminer puisque, suite à la réalisation de reprises analytiques de ce même échantillon, les valeurs obtenues chevauchent plusieurs niveaux de contamination simultanément. Selon l'expérience et la connaissance du personnel impliqué dans la prise de décision, l'enjeu de la décision, les particularités d'un projet ou d'un client et bien d'autres facteurs encore, parfois la valeur maximale ou parfois la valeur moyenne sera retenue parmi

les résultats répétés. Ainsi, il s'avère que l'interprétation des données soit sujette à une part trop importante de subjectivité, ce qui en affecte la prise de décision. En outre, cette interprétation actuelle est basée uniquement sur des données ponctuelles, relativement coûteuses à obtenir et généralement en quantité restreinte.

Le sol étant par définition un matériau hétérogène, il n'est donc pas surprenant de mesurer un certain niveau de contamination pour un groupe de particules données alors que, dans ce même échantillon, un niveau de contamination différent soit mesuré pour un groupe différent de particules (et peut-être situés très près l'un de l'autre). Également, les sites urbains contaminés, étant des milieux fortement anthropiques et complexes en raison de leur lourd passé industriel, il n'est pas rare que des stations d'échantillonnage, situées à quelques mètres de distance, présentent des caractéristiques physiques et chimiques très différentes. Sans la caractérisation de la représentativité des échantillons (hétérogénéité à l'échelle de l'échantillon) et sans la caractérisation de la géométrie physique interne du site et de la distribution spatiale de la contamination (hétérogénéité à l'échelle du terrain), il devient alors difficile d'obtenir un portrait fournissant un niveau adéquat d'information afin d'interpréter de manière judicieuse les données recueillies lors d'une caractérisation environnementale. La caractérisation de l'hétérogénéité devient donc essentielle et primordiale afin de formaliser et de rationaliser l'interprétation et la prise de décision tout en assurant le contrôle, c'est-à-dire la quantification dans un premier temps puis la réduction, de l'incertitude s'y rattachant.

Tout intervenant impliqué dans un projet de caractérisation et de réhabilitation d'un site urbain contaminé, qu'il soit le professionnel responsable des études, le propriétaire du site, le promoteur en charge du réaménagement du site, le législateur ou autre, ne peut qu'en retirer des avantages face à l'obtention d'un portrait physique et chimique juste du site découlant de la caractérisation de l'hétérogénéité. D'un côté, les risques d'erreurs professionnelles et de surcoûts imprévus sont minimisés par une prise de décision objective et rationnelle basée sur un niveau d'incertitude toléré. D'un autre côté, les risques environnementaux découlant d'une contamination non détectée sont réduits. La caractérisation de l'hétérogénéité demeure donc d'intérêt universel dans le domaine des sites urbains contaminés.

Par l'application de l'approche développée, l'incertitude globale peut donc être contrôlée, c'est-à-dire à la fois quantifiée et réduite, en tenant compte des aspects suivants :

- localisation de stations d'échantillonnage dans chacune des zones d'hétérogénéités distinctes délimitées suivant l'auscultation géophysique multi-méthodes;
- prélèvement d'échantillons représentatifs menant à l'obtention de données analytiques de qualité et à la détermination d'une structure spatiale de la contamination;
- quantification de l'incertitude globale liée à un plan d'échantillonnage donné;
- réduction de l'incertitude globale jusqu'à une valeur tolérée ou jusqu'à l'atteinte d'une stabilité suivant un ajout optimisé de données analytiques de qualité.

Les travaux de la présente thèse ont donc permis de vérifier et valider l'hypothèse que la caractérisation de l'hétérogénéité du sol, à la fois à l'échelle de l'échantillon et à l'échelle du terrain, permet d'assurer le contrôle de l'incertitude globale inhérente aux études de caractérisation environnementale des sites urbains contaminés.

6.5 Discussion complémentaire relative à la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination

La présente section présente un complément de discussion relatif à la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination permettant, entre autres, de renforcer le caractère global de l'approche développée ainsi que l'interrelation entre les trois concepts (apport direct des articles 1 et 2 au sein de l'article 3).

6.5.1 Apport de l'auscultation géophysique au sein de la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination

Les travaux de l'article 1 ont permis notamment une sectorisation du site en fonction des zones d'hétérogénéité distinctes soulignées par l'auscultation géophysique. La figure 6.1

présente une superposition des cartographies obtenues avec la méthode EM (mode vertical) et la méthode MAG. Chaque zone d'hétérogénéités distinctes a été délimitée par une ligne pointillée et identifiée par « zone 1 » à « zone 6 ». La délimitation a été réalisée selon les résultats obtenus lors de l'auscultation géophysique. La figure 6.1 présente également la localisation des stations d'échantillonnage constituant le sous-ensemble initial par des carrés noirs. Les particularités géophysiques qui ont été notées pour chacune de ces zones sont présentées au Tableau 6.1.

Il est à noter que, en raison de l'accessibilité limitée au site, les procédures développées lors des articles 2 et 3 ont été appliquées sur la parcelle du site délimitée par les zones 1 à 4. Dans le cadre du projet de recherche et du site étudié, les stations d'échantillonnage constituant le sous-ensemble initial pour les fins de l'application de la procédure géostatistique développée ont été localisées sur le site afin que 1) chaque zone d'hétérogénéités distinctes comporte au moins une station d'échantillonnage et que 2) le nombre de stations d'échantillonnage par zone soit relativement proportionnel à sa superficie. Ceci a donc permis de créer un sous-ensemble initial qui pouvait « représenter » dès le départ l'ensemble des particularités physiques rencontrées sur le site (basées sur l'auscultation géophysique).

Dans un contexte « réel » de caractérisation et lorsque l'envergure d'un projet le justifie, le site pourrait être divisé en secteurs distincts pour lesquels une procédure géostatistique distincte pourrait être appliquée afin d'optimiser un plan d'échantillonnage spécifique à chaque secteur. Chacun des secteurs pourrait être délimité en se basant à la fois sur les résultats de l'auscultation géophysique et sur l'utilisation actuelle ou historique du site. Puisque la taille du site à l'étude durant les travaux de recherche ne permettait pas de séparer le site en secteurs distincts pour les fins du traitement géostatistique, cette voie possible pourrait faire l'objet de travaux de recherche complémentaires.

Tableau 6.1 Particularités géophysiques notées par zone d'hétérogénéités distinctes

Zone	Méthode EM	Méthode MAG	Méthode ERI	Méthode GPR
Zone 1	Faible conductivité électrique apparente	Présence de plusieurs anomalies magnétiques	Fortes valeurs de résistivité électrique par endroits	Atténuation normale des ondes de réflexion, présence de diffractions multiples du signal par endroits
Zone 2	Forte conductivité électrique apparente	Peu d'anomalies magnétiques	Valeurs moyennes de résistivité électrique	Forte atténuation des ondes de réflexion
Zone 3	Conductivité électrique apparente moyenne	Présence de plusieurs anomalies magnétiques	Fortes valeurs de résistivité électrique par endroits	Atténuation normale des ondes de réflexion, présence de diffractions multiples du signal par endroits
Zone 4	Conductivité électrique apparente moyenne	Peu d'anomalies magnétiques	Valeurs moyennes de résistivité électrique	Atténuation normale des ondes de réflexion
Zone 5	Faible conductivité électrique apparente et présence d'anomalies	Présence de plusieurs anomalies magnétiques	Fortes valeurs de résistivité électrique par endroits	Atténuation normale des ondes de réflexion, présence de diffractions multiples du signal par endroits
Zone 6	Faible conductivité électrique apparente	Peu d'anomalies magnétiques	Valeurs moyennes de résistivité électrique	Atténuation normale des ondes de réflexion

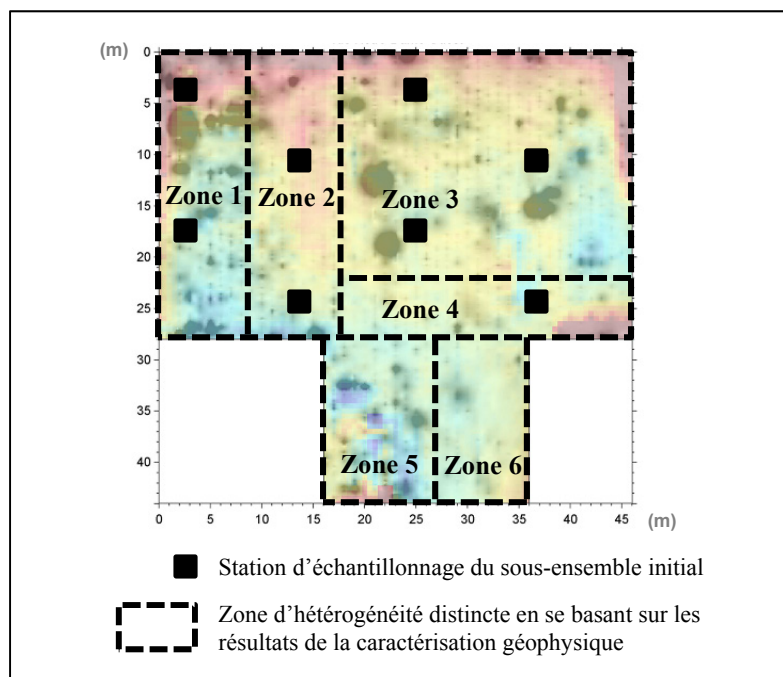


Figure 6.1 Sectorisation du site en zone d'hétérogénéités distinctes

6.5.2 Impact d'une procédure d'échantillonnage sur la détermination de la structure spatiale d'une contamination

Les travaux de l'article 2 ont permis notamment de produire un ensemble de données représentatives du site par l'application de la procédure développée d'échantillonnage basée sur la TEMM. À la section 4.3.5 (voir également figure 4.3), l'impact de la variabilité sur une prise de décision a été notamment discuté. Spécifiquement pour le plomb, des coefficients de variation de 16.3% et de 61.8% ont été obtenus respectivement pour la procédure d'échantillonnage développée (ASP) et pour la procédure d'échantillonnage par grappillage (GSP). Mais, qu'en est-il de l'impact de cette variabilité sur la détermination de la structure spatiale, en d'autres termes sur le modèle de variogramme inféré lors d'un traitement géostatistique?

À partir des coefficients de variation de 16,3% et 61,8%, une variabilité a été ajoutée à l'ensemble de données représentatives obtenu lors de l'article 2. Pour chaque point de prélèvement et spécifiquement pour la concentration en plomb (pour les fins du présent exemple), un ensemble de valeurs possibles a été généré pour chaque procédure d'échantillonnage (ASP et GSP). La distribution des valeurs possibles a été générée suivant les hypothèses et les conditionnements suivants : 1) la distribution des valeurs possibles suit une loi normale (se référer à la section 1.4.2 pour les concepts de distribution des erreurs aléatoires d'échantillonnage), 2) la distribution est centrée sur la valeur mesurée à chaque point de prélèvement, 3) l'écart-type de chaque distribution est fonction du coefficient de variation spécifique à chaque procédure et 4) un biais nul est considéré pour chaque procédure d'échantillonnage.

Au sein de chaque distribution de valeurs possibles déterminée spécifiquement par procédure d'échantillonnage, une valeur a été tirée au hasard (à l'aide d'un algorithme) et a été attribuée à chaque point de prélèvement. Par la suite, une modélisation des variogrammes expérimentaux et théoriques suivant la même méthode utilisée lors de l'article 3 (voir section 5.2.2.2) a été réalisée pour chacun des nouveaux ensembles de données afin de démontrer l'impact potentiel de la variabilité d'une procédure d'échantillonnage sur la structure spatiale.

La figure 6.2 et le Tableau 6.2 présentent les résultats de cette modélisation complémentaire obtenus à partir des concentrations en plomb. L'impact de la variabilité mesurée pour le plomb lors de la procédure ASP ($CV = 16,3\%$ pour le plomb) a été très minime sur les variogrammes expérimentaux, autant pour le variogramme horizontal que vertical, puisqu'ils sont très similaires à ceux présentés à la figure 5.3A. Également, les modèles de variogramme inférés (variogrammes théoriques) présentés au Tableau 6.2 s'avèrent être identiques à ceux utilisés pour l'article 3 (voir Table 5.2).

Toutefois, des différences importantes ont été observées entre les variogrammes obtenus avec un ajout de variabilité selon la procédure GSP ($CV = 61,8\%$ pour le plomb) et ceux sans ajout de variabilité présentés dans l'article 3. Cette variabilité de 61,8% a eu comme effet de :

- augmenter l'effet de pépité par un facteur de 5 (passant de 20 000 à 100 000);
- augmenter le ratio entre l'effet de pépité et le plateau par un facteur de 5 (passant de 0,048 à 0,24);
- masquer complètement la structure spatiale pouvant être déterminée verticalement (voir le bas de la figure 6.2B).

Il est à préciser que le variogramme expérimental vertical de la procédure GSP ne présente pas d'évidence de structure apparente de la contamination et pourrait être considéré comme un effet de pépité pur. À titre indicatif, un modèle de plateau et d'effet de pépité identiques à ceux du variogramme horizontal et de portée identique à celle du variogramme vertical de la procédure ASP est présenté à la figure 6.2.

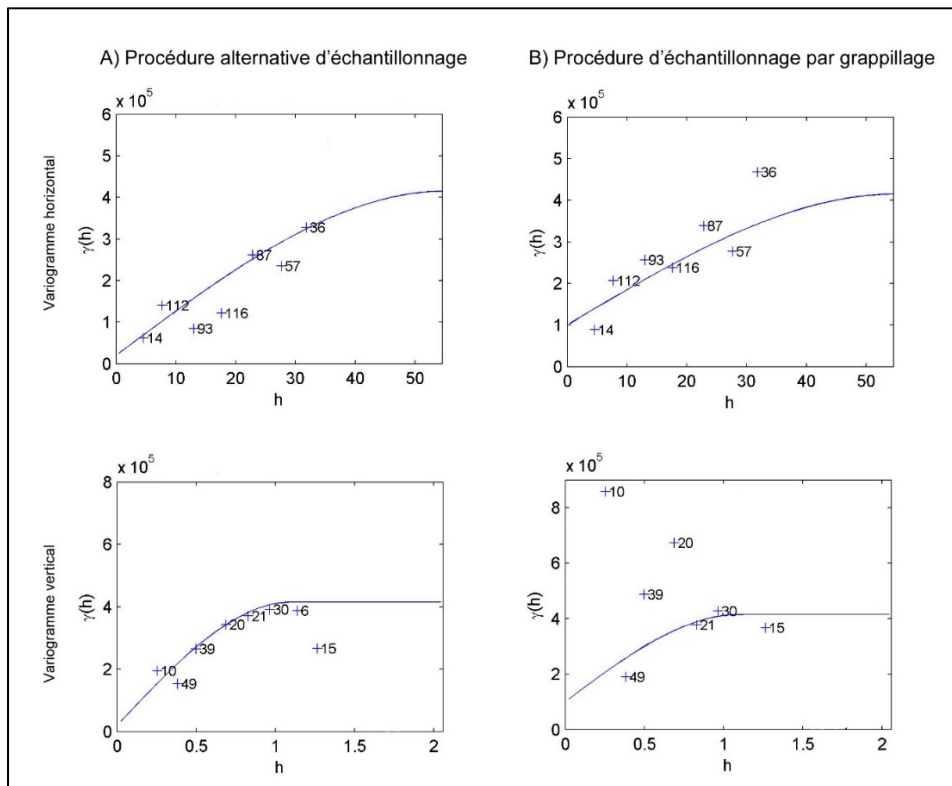


Figure 6.2 Comparaison des modèles de variogramme avec variabilité ajoutée
a) selon la procédure alternative d'échantillonnage (ASP) et
b) selon la procédure d'échantillonnage par grappillage (GSP)

Cette démonstration complémentaire vient donc démontrer l'impact négatif d'une procédure d'échantillonnage par grappillage dans la détermination de la distribution spatiale de la contamination et de sa structure. Cette démonstration permet également de mettre en évidence le besoin d'obtenir un ensemble de données de qualité et représentatives d'un site étudié afin de pouvoir recourir à une approche de contrôle de l'incertitude par géostatistique. En l'absence de la détermination d'une structure spatiale de la contamination qui, par exemple, découlerait d'une procédure d'échantillonnage de mauvaise qualité, l'optimisation de la localisation des stations d'échantillonnage constituant un plan d'échantillonnage serait alors impossible.

Tableau 6.2 Comparaison des modèles de variogrammes avec variabilité ajoutée

Variogramme		Effet de pépité	Plateau	Portée	Ratio effet de pépité sur plateau
Horizontal	Sans variabilité ajoutée (Article 3)	20000	415000	55	0,048
	Avec variabilité ajoutée selon ASP	20000	415000	55	0,048
	Avec variabilité ajoutée selon GSP	100000	415000	55	0,24
Vertical	Sans variabilité ajoutée (Article 3)	20000	415000	1.1	0,048
	Avec variabilité ajoutée selon ASP	20000	415000	1.1	0,048
	Avec variabilité ajoutée selon GSP	415000	415000	_*	_*

* Absence de structure spatiale, effet de pépité pur

6.5.3 Intérêt de l'intégration des mesures analytiques de terrain lors de la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination

Une des principales limitations de l'approche développée est liée sans aucun doute aux coûts additionnels potentiels pouvant découler de la caractérisation de l'hétérogénéité d'un site urbain contaminé par rapport à l'approche conventionnelle couramment appliquée dans la pratique. Ces surcoûts potentiels demeurent toutefois difficiles à évaluer puisque plusieurs facteurs peuvent les influencer, notamment l'envergure d'un site, l'échéancier envisagé des travaux de réhabilitation, les risques tolérés par les intervenants. L'application de l'approche développée dans un contexte réel de caractérisation et d'optimisation d'une stratégie d'échantillonnage pourrait faire l'objet de travaux de recherche complémentaires à la présente thèse doctorale afin d'évaluer son impact budgétaire sur le coût des travaux de caractérisation par la détermination d'une relation entre le coût analytique (mesures conventionnelles et sur site) et l'incertitude globale.

Par ailleurs, une limitation générale à tout traitement géostatistique est le nombre de données disponibles, limitation étroitement liée à la superficie d'un site. Généralement, un site contaminé de petite superficie implique un budget de caractérisation plus limité comparativement à un site plus grand, menant ainsi à un nombre restreint de données disponibles.

Une solution potentielle et commune à ces deux principales limitations (surcoûts potentiels et nombre restreint de données disponibles) serait l'intégration des mesures analytiques de terrain (voir figure 1.5 et section 1.3.2). En intégrant la prise de mesures analytiques sur site dans l'approche développée, le nombre minimal de données disponibles afin d'effectuer un traitement géostatistique ne devient plus alors une limitation de l'approche développée. Par un couplage de ces mesures sur site avec les résultats analytiques conventionnels, la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination pourrait devenir plus exhaustive par rapport à l'approche développée. Une optimisation non seulement de l'emplacement des stations d'échantillonnage comportant des résultats analytiques conventionnels mais

également des stations complémentaires comportant des résultats analytiques sur site pourrait être réalisée tout en tenant compte du budget fixé pour des travaux de caractérisation. Dans ce cas, la procédure géostatistique développée pourrait être modifiée afin de tenir compte de la présence de deux types de données analytiques, soit conventionnelles et sur site et du coût associé à l'acquisition de chaque type de mesure.

Cette voie possible d'amélioration de l'approche développée pourrait faire l'objet de travaux de recherche complémentaire à la présente thèse doctorale afin de définir notamment une méthode adéquate de couplage des diverses mesures analytiques.

CONCLUSIONS

En raison de l'urbanisation à l'échelle planétaire, les défis en matière de développement urbain durable sont nombreux. Parmi ceux-ci, un défi de grande envergure est l'utilisation efficace du territoire afin de réduire l'étalement urbain et ainsi nos impacts sur les écosystèmes environnants. Le réaménagement et la réhabilitation des sites urbains contaminés fait donc partie de ces défis stratégiques en vue d'une urbanisation durable. Dans leur rapport intitulé « Réhabiliter le passé, construire l'avenir : une stratégie nationale des sites urbains contaminés réhabilitables pour le Canada », la TRNEE (2003) soulèvent les principaux obstacles susceptibles d'affecter le réaménagement des sites urbains contaminés qui, pour la majorité d'entre eux, présentent un fort potentiel de réaménagement. Ces obstacles découlent d'une même source : l'incertitude. Le contrôle de l'incertitude lors de la caractérisation environnementale est donc un facteur clé permettant de surmonter ces obstacles. Bien qu'il représente un défi important, le contrôle de cette incertitude est pourtant peu étudié et maîtrisé, voire inexistant dans la pratique.

Puisque l'incertitude entache le processus de caractérisation et de réhabilitation d'un site urbain contaminé, il est donc nécessaire de déterminer comment il serait possible de la contrôler, c'est-à-dire de la quantifier dans un premier temps puis de la réduire.

L'hypothèse principale de la présente recherche doctorale a donc été que la caractérisation de l'hétérogénéité du sol, à la fois à l'échelle de l'échantillon et à l'échelle du terrain, permet d'assurer le contrôle de l'incertitude globale inhérente aux études de caractérisation environnementale des sites urbains contaminés.

Ainsi, l'objectif premier de recherche a été de développer et de formuler une approche qui permettait de contrôler l'incertitude globale associée aux études de caractérisation des sites urbains contaminés par la caractérisation de son hétérogénéité. La stratégie de recherche a reposé sur la caractérisation de l'hétérogénéité à travers trois concepts interreliés : 1) la géométrie physique interne, 2) la représentativité des échantillons et 3) la distribution spatiale

de la contamination. Les objectifs spécifiques qui ont découlé de l'hypothèse principale et des trois concepts interreliés ont été :

1. Développer une approche d'auscultation géophysique multi-méthodes qui permet la caractérisation de la géométrie physique interne de façon pratiquement continue;
2. Développer une approche d'échantillonnage représentatif spécifique aux sites urbains contaminés qui permet d'assurer la représentativité des échantillons;
3. Développer une approche géostatistique pour une contamination multi-éléments en trois dimensions qui permet la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination.

Sommairement, ces trois approches ont permis de :

1. Réaliser une sectorisation d'un site en zones d'hétérogénéités distinctes à la fois sur le plan horizontal et sur le plan vertical par une interprétation croisée des résultats obtenus à l'aide des méthodes géophysiques EM, MAG, GPR et ERI;
2. Améliorer la schématisation de la structure, tant verticale qu'horizontale, de l'hétérogénéité physique du remblai urbain ainsi que la délimitation de l'interface stratigraphique entre le remblai et le sol naturel;
3. Développer une méthode d'échantillonnage basée sur la TEMM et adaptée aux sols contaminés qui permet, en moyenne, une amélioration de la reproductibilité par un facteur de 10 (facteur variant de 3 à 19 selon le métal) comparativement à la méthode d'échantillonnage conventionnel par grappillage;
4. Quantifier la reproductibilité d'un échantillonnage et ce, pour chacune de ses sous-étapes (c.-à-d. du terrain jusqu'à l'analyse en laboratoire). Il a été notamment démontré que les sous-étapes d'échantillonnage qui engendrent la plus grande perte en reproductibilité sont réalisées sur le terrain. Dans la présente étude, 84% de la variance relative totale a été produite lors de l'échantillonnage sur le terrain comparativement à 15% lors de l'échantillonnage en laboratoire et seulement 1% lors des opérations menant à l'analyse chimique;

5. Quantifier à la fois l'incertitude locale (c.-à-d. la probabilité de dépassement d'un seuil réglementaire à un endroit donné) et de l'incertitude globale (c.-à-d. sur l'ensemble d'un site) spécifique à un plan d'échantillonnage donné;
6. Optimiser l'emplacement et le nombre de stations d'échantillonnage durant des phases complémentaires de caractérisation suivant un algorithme rationnel afin d'atteindre une stabilité de l'incertitude globale. Pour le site étudié, il a été déterminé que l'incertitude globale associée à un plan d'échantillonnage optimisé avec 19 stations d'échantillonnage a été comparable à celle obtenue avec 38 stations d'échantillonnage. Lors du processus d'optimisation, cette incertitude globale est passée de 31% pour le sous-ensemble initial à 20% pour le plan optimisé comparativement à 16% pour l'ensemble des données. Le nombre de stations d'échantillonnage du plan optimisé a pu ainsi être réduit à la moitié du nombre total de stations d'échantillonnage tout en ayant une incertitude globale comparable.

Basée sur les trois approches étroitement liées, l'incertitude globale a pu être contrôlée, à la fois quantifiée et réduite, en tenant compte des aspects suivants :

- localisation de stations d'échantillonnage dans chacune des zones d'hétérogénéités distinctes délimitées suivant l'auscultation géophysique multi-méthodes;
- prélèvement d'échantillons représentatifs menant à l'obtention de données analytiques de qualité et à la détermination d'une structure spatiale de la contamination;
- quantification de l'incertitude globale liée à un plan d'échantillonnage donné;
- réduction de l'incertitude globale jusqu'à une valeur tolérée ou jusqu'à l'atteinte d'une stabilité suivant un ajout optimisé de données analytiques de qualité.

Ces trois approches ont donc été appliquées sur un réel site urbain contaminé, lequel est caractérisé par la présence d'un remblai hétérogène lui conférant une très forte hétérogénéité tant physique que chimique. De par cette complexité et en étant typique de d'autres site urbains contaminés retrouvés dans la pratique, le site à l'étude s'avérait être un cas idéal afin

de valider l'approche globale de caractérisation de l'hétérogénéité et du contrôle de l'incertitude.

L'approche globale développée a donc permis de mettre en évidence l'importance de la caractérisation de l'hétérogénéité d'un site contaminé afin d'assurer le contrôle de l'incertitude globale. Sans la caractérisation de l'hétérogénéité d'un site, il s'avère que le contrôle de l'incertitude est très difficile, voire impossible. Il a été également démontré qu'une caractérisation adéquate de l'hétérogénéité d'un site, autant à l'échelle de l'échantillon qu'à l'échelle du terrain, permet l'élaboration d'un modèle conceptuel fiable du site, ce qui permet de tendre vers une prise de décision éclairée, à la fois juste et rationnelle, par les intervenants d'un projet de caractérisation et de réhabilitation d'un site urbain contaminé.

Afin de contrôler l'incertitude lors d'une caractérisation environnementale d'un site contaminé et d'optimiser une stratégie d'échantillonnage, il est crucial de pouvoir, dans un premier temps, quantifier l'incertitude et, dans un deuxième temps, la réduire. À cet effet, l'approche développée permet de fournir un processus formel et rationnel du contrôle de l'incertitude par l'obtention d'échantillons représentatifs et de données de qualité ainsi que l'interprétation spatiale de l'ensemble des données fondée sur un traitement géostatistique. Les approches d'auscultation géophysique multi-méthodes, d'échantillonnage représentatif et géostatistique développées permettent ainsi de mener conjointement à un plan d'échantillonnage optimisé pour lequel le niveau d'incertitude est à la fois connu et pouvant être toléré par les différents intervenants d'un projet.

Bien que l'approche globale présentée n'ait pas fait l'objet d'application sur d'autres sites urbains contaminés, elle a été développée en vue d'être la plus universelle et adaptable possible aux particularités rencontrées dans le domaine des sites urbains contaminés. Les applications ultérieures de cette approche sur d'autres sites contaminés pourront permettre de confirmer cette « universalité ».

L'une des principales améliorations potentielles de l'approche développée qui a été relevée serait l'intégration des mesures analytiques de terrain dans le processus de caractérisation environnementale. Cette intégration permettrait d'améliorer de façon marquée la caractérisation de la distribution spatiale de la contamination et par le fait même, d'assurer un meilleur contrôle de l'incertitude. Cette voie de recherche semble présenter un fort potentiel d'amélioration à l'approche développée et pourrait ainsi faire l'objet de travaux complémentaires de recherche.

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abbaspour, K., V. Matta, P. Huggenberger et C. A. Johnson. 2000. « A contaminated site investigation: comparison of information gained from geophysical measurements and hydrogeological modeling ». *Journal of Contaminant Hydrology*, vol. 40, n° 4, p. 365-380.
- ADEME - Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie. 2014. « Le grand nettoyage ». *La recherche*, vol. Novembre 2014, n° 493.
- Alabert, Francois. 1987. « The practice of fast conditional simulations through the LU decomposition of the covariance matrix ». *Mathematical Geology*, vol. 19, n° 5, p. 369-386.
- Asprion, U., et T. Aigner. 1999. « Towards realistic aquifer models: three-dimensional georadar surveys of Quaternary gravel deltas (Singen Basin, SW Germany) ». *Sedimentary Geology*, vol. 129, n° 3-4, p. 281-297.
- ASTM - American Society for Testing Materials. 2006. *Standard guide for soil sampling from the vadose zone*. D4700-91. West Conshohocken: ASTM International.
- ASTM - American Society for Testing Materials. 2010. *Standard Practice for Expedited Site Characterization of Vadose Zone and Groundwater Contamination at Hazardous Waste Contaminated Sites*. D6235-04. West Conshohocken: ASTM International.
- Beres, Milan, Peter Huggenberger, Alan G. Green et Heinrich Horstmeyer. 1999. « Using two- and three-dimensional georadar methods to characterize glaciofluvial architecture ». *Sedimentary Geology*, vol. 129, n° 1-2, p. 1-24.
- Beres, Milan Jr., et F.P. Haeni. 1991. « Application of ground-penetrating-radar methods in hydrogeologic studies ». *Ground Water*, vol. 29, n° 3, p. 375-386.
- Biasioli, M., R. Barberis et F. Ajmone-Marsan. 2006. « The influence of a large city on some soil properties and metals content ». *Science of The Total Environment*, vol. 356, n° 1-3, p. 154-164.

- Boudreault, Jean-Philippe, Jean-Sébastien Dubé, Michel Chouteau, Thierry Winiarski et Éric Hardy. 2010. « Geophysical characterization of contaminated urban fills ». *Engineering Geology*, vol. 116, n° 3–4, p. 196-206.
- Boudreault, Jean-Philippe, Jean-Sébastien Dubé, Mirela Sona et Éric Hardy. 2012. « Analysis of procedures for sampling contaminated soil using Gy's Sampling Theory and Practice ». *Science of The Total Environment*, vol. 425, p. 199-207.
- BRGM - Bureau de recherches géologiques et minières. 2004. *Protocole d'échantillonnage des sols urbains pollués par du plomb*. Rapport RP-52928-FR, 26 p.
- Burgess, T. M., R. Webster et A. B. McBratney. 1981. « Optimal interpolation and isarithmic mapping of soil properties. IV Sampling Strategy ». *Journal of Soil Science*, vol. 32, n° 4, p. 643-659.
- Cattle, Julie A., Alex B. McBratney et Budiman Minasny. 2002. « Kriging method evaluation for assessing the spatial distribution of urban soil lead contamination ». *Journal of Environmental Quality*, vol. 31, n° 5, p. 1576-1588.
- CCME - Canadian Council of Ministers of the Environment. 1993. *Guidance manual on sampling, analysis, and data management for contaminated sites*. Winnipeg: Manitoba Statutory Publications.
- CEAEQ - Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec. 2014. *Détermination des métaux : méthode par spectrométrie de masse à source ionisante au plasma d'argon. MA. 200 – Mét 1.2, Rév. 5*. Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques du Québec, 36 p.
- Chilès, J.-P., et P. Delfiner. 2012. *Geostatistics: Modeling Spatial Uncertainty*, 2nd. New Jersey: John Wiley & Sons, 734 p.
- Cressie, N. 1991. *Statistics for Spatial Data*, Revised. New Jersey: John Wiley & Sons, 928 p.
- Crumbling, D.M. 2004. « The triad approach to managing the uncertainty in environmental data ». In *Annual National Environmental Monitoring Conference*. (Washington, DC).

- Crumbling, D.M., J. Griffith et D.M. Powell. 2003. « Improving decision quality: Making the case for adopting next-generation site characterization practices ». *Remediation Journal*, vol. 13, n° 2, p. 91-111.
- Crumbling, D.M., C. Groenjes, B. Lesnik, K. Lynch, J. Shockley, J. van Ee, R. Howe, L. Keith et J. McKenna. 2001. « Managing uncertainty in environmental decision ». *Environmental Science and Technology*, vol. 35, n° 19, p. 404-409.
- D'Or, D. 2005. « Towards a real-time multi-phase sampling strategy optimization ». In *Geostatistics for Environmental Applications*, sous la dir. de Renard, P., H. Demougeot-Renard et R. Froidevaux. p. 355-366. Springer.
- D'Or, D., H. Demougeot-Renard et M. Garcia. 2009. « An Integrated Geostatistical Approach for Contaminated Site and Soil Characterisation ». *Mathematical Geosciences*, vol. 41, n° 3, p. 307-322.
- De Fouquet, C. 2011. « From exploratory data analysis to geostatistical estimation: examples from the analysis of soil pollutants ». *European Journal of Soil Science*, vol. 62, n° 3, p. 454-466.
- De Iaco, S., et M. Palma. 2002. « Convergence of realization-based statistics to model-based statistics for the LU unconditional simulation algorithm: some numerical tests ». *Stochastic Environmental Research and Risk Assessment*, vol. 16, n° 5, p. 333-341.
- Demougeot-Renard, Helene, Chantal De Fouquet et Philippe Renard. 2004. « Forecasting the number of soil samples required to reduce remediation cost uncertainty ». *Journal of Environmental Quality*, vol. 33, n° 5, p. 1694-1702.
- DEP - Department of Environmental Protection (Government of Western Australia). 2001. *Development of sampling and analysis programs*. Perth: Department of environmental protection.
- Dermont, G., M. Bergeron, G. Mercier et M. Richer-Laflèche. 2008. « Metal-Contaminated Soils: Remediation Practices and Treatment Technologies ». *Practice Periodical of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste Management*, vol. 12, n° 3, p. 188-209.

- Deutsch, C. V., et A. G. Journel. 1998. *GSLIB: Geostatistical Software Library and User's Guide*. New York: Oxford University Press, 369 p.
- DOEGN - Department of environment (Government of Nunavut). 2009. *Guideline: contaminated site remediation*. Iqaluit: GNU Department of environment.
- Dorsey, J. W. 2003. « Brownfields and Greenfields: The Intersection of Sustainable Development and Environmental Stewardship ». *Environmental Practice*, vol. 5, n° 01, p. 69-76.
- Dubé, J.-S., et R. Galvez-Cloutier. 1998. « Sequential extractions and SEM for Pb behavior analysis under pH alteration ». In *Sêco e Pinto PS (ed.), Environmental Geotechnics. Proceedings of the 3rd International Congress on Environmental Geotechnics*. p. 569-74. Lisbon: AA Balkema.
- Dubé, Jean-Sébastien, Jean-Philippe Boudreault, Régis Bost, Mirela Sona, François Duhaime et Yannic Éthier. 2015. « Representativeness of laboratory sampling procedures for the analysis of trace metals in soil ». *Environmental Science and Pollution Research*, p. 1-15.
- Dubé, Jean-Sébastien, Mirela Sona, Jean-Philippe Boudreault et Eric Hardy. 2014. « Influence of Particle Size and Grinding on Measurement of Trace Metal Concentrations in Urban Anthropogenic Soils ». *Journal of Environmental Engineering*, vol. 140, n° 6.
- Duchesne, Josée, et Guy Mercier. 2003. « Établissement d'une méthode de caractérisation minéralogique décrivant les sols contaminés par le plomb ». *Canadian Geotechnical Journal*, vol. 40, n° 4, p. 731-741.
- EDP - Environmental Protection Department (Government of the Hong Kong Special Administrative Region). 2011. *Practice guide for investigation and remediation of contaminated land*. Hong Kong: Environmental Protection Department.
- Eiswirth, Matthias, et Heinz Hoetzel. 1995. « Tracer techniques and soil gas surveys for the detection of contaminant transport ». In *Proceedings of the 1995 XXI General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics, Jul 1-14 1995*. (Boulder, CO, USA), p. 31-39. Coll. « IAHS Publication (International Association of Hydrological Sciences) »: IAHS, Wallingford, Engl.

- EPASA - Environment Protection Authority (Government of South Australia). 2005. *Composite sampling in site contamination assessment and management*. Adelaide: Environment Protection Authority.
- Ersoy, A., T. Y. Yunsel et M. Cetin. 2004. « Characterization of Land Contaminated by Past Heavy Metal Mining Using Geostatistical Methods ». *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, vol. 46, n° 2, p. 162-175.
- Ersoy, Adem, Tayfun Yusuf Yunsel et Ümit Atici. 2008. « Geostatistical conditional simulation for the assessment of contaminated land by abandoned heavy metal mining ». *Environmental Toxicology*, vol. 23, n° 1, p. 96-109.
- Francois-Bongarcon, D., et P. Gy. 2002. « The most common error in applying 'Gy's formula' in the theory of mineral sampling, and the history of the liberation factor ». *Journal of The South African Institute of Mining and Metallurgy*, vol. 102, n° 8, p. 475-479.
- Frohlich, Reinhard K., Patrick J. Barosh et Thomas Boving. 2008. « Investigating changes of electrical characteristics of the saturated zone affected by hazardous organic waste ». *Journal of Applied Geophysics*, vol. 64, n° 1-2, p. 25-36.
- Gerlach, R.W., et J.M. Nocerino. 2003. *Guidance for obtaining representative laboratory analytical subsamples from particulate laboratory samples*. EPA/600/R-03/027: USEPA - United States Environmental Protection Agency.
- Gerlach, Robert W. , David E. Dobb, Gregory A. Raab et John M. Nocerino. 2002. « Gy sampling theory in environmental studies. 1. Assessing soil splitting protocols ». *Journal of Chemometrics*, vol. 16, n° 7, p. 321-328.
- Glavin, R.J., et P.S. Hooda. 2005. « A practical examination of the use of geostatistics in the remediation of a site with a complex metal contamination history ». *Soil and Sediment Contamination*, vol. 14, n° 2, p. 155-169.
- Goovaerts, P. 1997. *Geostatistics for Natural Resources Evaluation*. New York: Oxford University Press, 512 p.
- Goovaerts, P. 1999. « Geostatistics in soil science: state-of-the-art and perspectives ». *Geoderma*, vol. 89, n° 1-2, p. 1-45.

- Goovaerts, P. 2001. « Geostatistical modelling of uncertainty in soil science ». *Geoderma*, vol. 103, n° 1-2, p. 3-26.
- Goovaerts, P. 2005. « Geostatistical modeling of the spaces of local, spatial, and response uncertainty for continuous petrophysical properties ». In *Stochastic modeling and geostatistics: Principles, methods, and case studies*, sous la dir. de T. C. Coburn, J.M. Yarus, and R. L. Chambers. Vol. volume II, p. 1-21.
- Goutaland, D., T. Winiarski, J.-S. Dubé, G. Bièvre, J.-F. Buoncristiani, M. Chouteau et B. Giroux. 2008. « Hydrostratigraphic characterization of glaciofluvial deposits underlying an infiltration basin using ground penetrating radar ». *Vadose Zone Journal*, vol. 7, p. 194-207.
- Guérin, Roger, Philippe Bégassat, Yves Benderitter, Jacques David, Alain Tabbagh et Ménard Thiry. 2004. « Geophysical study of the industrial waste land in Mortagne-du-Nord (France) using electrical resistivity ». *Near Surface Geophysics*, vol. 2, n° 3, p. 137-143.
- Gustavsson, B., K. Luthbom et A. Lagerkvist. 2006. « Comparison of analytical error and sampling error for contaminated soil ». *Journal of Hazardous Materials*, vol. 138, n° 2, p. 252-260.
- Gy, Pierre. 1996. *L'échantillonnage des lots de matière en vue de leur analyse*. Paris: Masson, 148 p.
- Gy, Pierre. 2004a. « Sampling of discrete materials-a new introduction to the theory of sampling: I. Qualitative approach ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 74, n° 1, p. 7-24.
- Gy, Pierre. 2004b. « Sampling of discrete materials: II. Quantitative approach--sampling of zero-dimensional objects ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 74, n° 1, p. 25-38.
- Gy, Pierre. 2004c. « Sampling of discrete materials: III. Quantitative approach—sampling of one-dimensional objects ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 74, n° 1, p. 39-47.

- Heinz, J., et T. Aigner. 2003. « Three-dimensional GPR analysis of various Quaternary gravel-bed braided river deposits (southwestern Germany) ». *Geological Society, London, Special Publications*, vol. 211, n° 1, p. 99-110.
- Holt, Jennifer, et Jeffrey Daniels. 2000. « Magnetic data interpretation in a high noise urban environment ». In *Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems*. (Arlington, Virginia).
- Holt, Jennifer, Jeffrey Daniels, Mark Vendl, Francois Baumgartner et Stanley Radziviscius. 1998. « Brownfield site investigation using geophysics: A case history from East Chicago ». In *Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems*. (Chicago, Illinois).
- Horta, A., J. Carvalho et A. Soares. 2008. « Assessing the Quality of the Soil by Stochastic Simulation ». In *geoENV VI – Geostatistics for Environmental Applications*, sous la dir. de Soares, Amílcar, MariaJoão Pereira et Roussos Dimitrakopoulos. Vol. 15, p. 385-396. Coll. « Quantitative Geology and Geostatistics »: Springer Netherlands.
- Horta, Ana, Pedro Correia, Luis Menezes Pinheiro et Amilcar Soares. 2013. « Geostatistical Data Integration Model for Contamination Assessment ». *Mathematical Geosciences*, vol. 45, n° 5, p. 575-590.
- Hou, Deyi, et Abir Al-Tabbaa. 2014. « Sustainability: A new imperative in contaminated land remediation ». *Environmental Science & Policy*, vol. 39, n° 0, p. 25-34.
- Huggenberger, Peter, Edi Meier et Andre Pugin. 1994. « Ground-probing radar as a tool for heterogeneity estimation in gravel deposits: advances in data-processing and facies analysis ». *Proceedings of the International Symposium on Geophysics and Environment, Apr 14-16 1993, Journal of Applied Geophysics*, vol. 31, n° 1-4, p. 171-184.
- IAEA - International Atomic Energy Agency. 2004. *Soil sampling for environmental contaminants*. Vienna: International Atomic Energy Agency.
- ISO- International Organization for Standardization. 2002. *Soil quality – sampling – part 1: guidance on the design of sampling programmes*. International standard ISO 10381-1:2002(E). Geneva: International Organization for Standardization.

- ISO - International Organization for Standardization. 2002. *Soil quality – sampling – part 2: guidance on sampling techniques*. International standard ISO 10381-2:2002(E). Geneva: International Organization for Standardization.
- ITRC - Interstate Technology & Regulatory Council. 2003. *Technical and Regulatory Guidance for the Triad Approach: A New Paradigm for Environmental Project Management*. United States: ITRC.
- ITRC - Interstate Technology & Regulatory Council. 2007. *Triad Implementation Guide. SCM-3*. United States: ITRC.
- Jakobsen, P. R., et T. Overgaard. 2002. « Georadar facies and glaciotectionic structures in ice marginal deposits, northwest Zealand, Denmark ». *Quaternary Science Reviews*, vol. 21, n° 8-9, p. 917-927.
- JCGM - Joint Committee for Guides in Metrology. 2008. *Évaluation des données de mesure - Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure*. JCGM 100:2008(F): Joint Committee for Guides in Metrology (Comité commun pour les guides en métrologie).
- Juang, Kai-Wei, Yue-Shin Chen et Dar-Yuan Lee. 2004. « Using sequential indicator simulation to assess the uncertainty of delineating heavy-metal contaminated soils ». *Environmental Pollution*, vol. 127, n° 2, p. 229-238.
- Juang, Kai-Wei, et Dar-Yuan Lee. 1998. « Simple indicator kriging for estimating the probability of incorrectly delineating hazardous areas in a contaminated site ». *Environmental Science and Technology*, vol. 32, n° 17, p. 2487-2493.
- Kostic, Boris, Andreas Becht et Thomas Aigner. 2005. « 3-D sedimentary architecture of a Quaternary gravel delta (SW-Germany): Implications for hydrostratigraphy ». *Sedimentary Geology*, vol. 181, n° 3-4, p. 147-171.
- Kowalsky, Michael B., Stefan Finsterle et Yoram Rubin. 2004. « Estimating flow parameter distributions using ground-penetrating radar and hydrological measurements during transient flow in the vadose zone ». *Advances in Water Resources*, vol. 27, n° 6, p. 583-599.

- Lamé, Frank P. J., et Peter R. Defize. 1993. « Sampling of contaminated soil: sampling error in relation to sample size and segregation ». *Environmental Science & Technology*, vol. 27, n° 10, p. 2035-2044.
- Mäkinen, Erkki, Maarit Korhonen, Eeva-Liisa Viskari, Seija Haapamäki, Maaret Järvinen et Li Lu. 2006. « Comparison of Xrf and Faas Methods in Analysing Cca Contaminated Soils ». *Water, Air, & Soil Pollution*, vol. 171, n° 1-4, p. 95-110.
- Marcotte, Denis. 1995. « Generalized cross-validation for covariance model selection ». *Mathematical Geology*, vol. 27, n° 5, p. 659-672.
- Mason, B.J. 1992. *Preparation of soil sampling protocols: Sampling techniques and strategies*. EPA/600/R-92/128. Washington, DC: Environmental Protection Agency des États-Unis (USEPA), 169 p.
- Matheron, G. 1973. « The Intrinsic Random Functions and Their Applications ». *Advances in Applied Probability*, vol. 5, n° 3, p. 439-468.
- McComb, Jacqueline Q., Christian Rogers, Fengxiang X. Han et Paul B. Tchounwou. 2014. « Rapid screening of heavy metals and trace elements in environmental samples using portable X-ray fluorescence spectrometer, A comparative study ». *Water, Air, and Soil Pollution*, vol. 225, n° 12.
- McDonald, B. J. 2011. « Characterization of heavy metal contamination in soil using XRF ». In *Geo-Frontiers 2011: Advances in Geotechnical Engineering, March 13, 2011 - March 16, 2011*. (Dallas, TX, United states), 211 GSP, p. 2524-2533. Coll. « Geotechnical Special Publication »: American Society of Civil Engineers (ASCE). < [http://dx.doi.org/10.1061/41165\(397\)258](http://dx.doi.org/10.1061/41165(397)258) >.
- MDDEP - Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs. 2008. *Guide d'échantillonnage à des fins d'analyses environnementales : Cahier 1 - Généralités*. Québec: Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec, 58 p.
- MDDEP - Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs. 2010. *Guide d'échantillonnage à des fins d'analyses environnementales : Cahier 5 - Échantillonnage des sols*. Québec: Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec, 58 p.

- MEBC - Ministry of Environment (Government of British Columbia). 2001. *Composite samples: a guide for regulators and project managers on the use of composite samples*. Contaminated sites statistical applications guidance document No. 12-10. Victoria: Ministry of Environment.
- MEF - Ministère de l'Environnement et de la Faune. 1998. « Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés ». En ligne. Québec, Canada. < <http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/sol/terrains/politique/index.htm> >.
- Meju, M.A. 2000. « Geoelectrical investigation of old/abandoned, covered landfill sites in urban areas: Model development with a genetic diagnosis approach ». *Journal of Applied Geophysics*, vol. 44, n° 2-3, p. 115-150.
- MENV - Ministère de l'Environnement. 2003. *Guide de caractérisation des terrains*. Sainte-Foy: Les Publications du Québec.
- MEO - Ministry of the Environment of Ontario. 1996. *Guidance on sampling and analytical methods for use at contaminated sites in Ontario*. Toronto: Queen's printer for Ontario.
- MEO - Ministry of the Environment of Ontario. 2011. *Guide for completing phase two environmental site assessments under Ontario regulation 153/04*. Toronto: Queen's printer for Ontario.
- Minkkinen, P. 2004. « Practical applications of sampling theory ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 74, n° 1, p. 85-94.
- Minnitt, RCA, PM Rice et C. Spangenberg. 2007. « Part 1. Understanding the components of the fundamental sampling error: a key to good sampling practice ». *J. S. Afr. Inst. Min. Metall.*, n° 107, p. 505-11.
- Mundell, John A., et Gregory B. Byer. 2004. « Use of geophysical surveys for fill characterization and quantity estimation at brownfield sites - A case history ». In *Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems*. (Colorado Springs, Colorado).
- Myers, Jeffrey C. 1997. *Geostatistical Error Management: Quantifying Uncertainty for Environmental Sampling and Mapping*. New York: Van Nostrand Reinhold, 571 p.

- Neal, Adrian. 2004. « Ground-penetrating radar and its use in sedimentology: principles, problems and progress ». *Earth-Science Reviews*, vol. 66, n° 3-4, p. 261-330.
- Noguera, Jose F., Lluís Rivero, Xavier Font, Andres Navarro et Francisco Martinez. 2002. « Simultaneous use of geochemical and geophysical methods to characterise abandoned landfills ». *Environmental Geology*, vol. 41, n° 8, p. 898-905.
- Norra, Stefan, Nabil Fjer, Fanwei Li, Xianfeng Chu, Xudong Xie et Doris StÃ¼ben. 2008. « The influence of different land uses on mineralogical and chemical composition and horizonation of urban soil profiles in Qingdao, China ». *Journal of Soils and Sediments*, vol. 8, n° 1, p. 4-16.
- NSWEPA - New South Wales Environment Protection Authority. 1995. *Sampling design guidelines*. Sydney: New South Wales Environment Protection Authority.
- Paull, Evans. 2008. *Energy benefits of urban infill, brownfields, and sustainable urban redevelopment*.
- Pellerin, Louise. 2002. « Applications Of Electrical And Electromagnetic Methods For Environmental And Geotechnical Investigations ». *Surveys in Geophysics*, vol. 23, n° 2, p. 101-132.
- Petersen, Lars, Casper K. Dahl et Kim H. Esbensen. 2004. « Representative mass reduction in sampling--a critical survey of techniques and hardware ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 74, n° 1, p. 95-114.
- Petersen, Lars, Pentti Minkkinen et Kim H. Esbensen. 2005. « Representative sampling for reliable data analysis: Theory of Sampling ». *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, vol. 77, n° 1-2, p. 261-277.
- Pitard, Francis F. 1993. *Pierre Gy's Sampling Theory and Sampling Practice : Heterogeneity, Sampling Correctness, and Statistical Process Control*. Boca Raton: CRC Press, 488 pages p.
- Preville, Emmanuel. 2004. « Rural Canada: Gross domestic product and employment, 1986-2001 ». Library of Parliament.

- Publications du Québec. 2010. *Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains : L.Q.R., chap. Q-2, r.18.1.01*. En ligne. Québec, Canada: Éditeur officiel du Québec. < http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=3&file=/Q_2/Q2R18_1_01.htm >. Consulté le 5 avril 2010.
- Publications du Québec. 2015a. *Règlement sur l'enfouissement des sols contaminés : L.Q.R., chap. Q-2, r.6.01*. En ligne. Québec, Canada: Éditeur officiel du Québec. < http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=3&file=/Q_2/Q2R18_1_01.htm >. Consulté le 5 avril 2010.
- Publications du Québec. 2015b. *Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains : L.Q.R., chap. Q-2, r.18.1.01*. En ligne. Québec, Canada: Éditeur officiel du Québec. < http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=3&file=/Q_2/Q2R18_1_01.htm >. Consulté le 5 avril 2010.
- Qualitas. 2010. *Étude géotechnique et caractérisation environnementale complémentaire - Résidences phase IV - Rues De La Montagne et William, Montréal (Québec) - Dossier no: 16039-GE2*. Longueuil: Groupe Qualitas inc.
- Quéformat. 2004a. *Rapport de caractérisation environnementale Phase I : Développement projeté de l'École de technologie supérieure*. Longueuil: Quéformat ltée.
- Quéformat. 2004b. *Rapport de caractérisation environnementale Phase II : Développement projeté de l'École de technologie supérieure*. Longueuil: Quéformat ltée.
- Ramsey, M.H., et S.L.R. Ellison. 2007. *Measurement uncertainty arising from sampling: a guide to methods and approaches*. Eurachem/EUROLAB/CITAC/Nordtest/AMC, 33 p.
- Ramsey, Michael. 1998. « Sampling as a source of measurement uncertainty: techniques for quantification and comparison with analytical sources ». *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol. 13, n° 2, p. 97-104.
- Reynolds, John M. 1997. *An Introduction to Applied and Environmental Geophysics*. England: Wiley, 796 p.

- Salem, Ahmed, Dhananjay Ravat, T. Jeffrey Gamey et Keisuke Ushijima. 2002. « Analytic signal approach and its applicability in environmental magnetic investigations ». *Journal of Applied Geophysics*, vol. 49, n° 4, p. 231-244.
- Schwartz, C., L. Florentin, D. Charpentier, S. Muzika et J.-L. Morel. 2000. « Le pédologue en milieux industriels et urbains: I. Sols d'une friche industrielle ». *Étude et Gestion des Sols*, vol. 8, n° 2, p. 135-148.
- Schwartz, Christophe, Emilie Gérard, Karen Perronnet et Jean Louis Morel. 2001. « Measurement of in situ phytoextraction of zinc by spontaneous metallophytes growing on a former smelter site ». *The Science of The Total Environment*, vol. 279, n° 1-3, p. 215-221.
- Soupios, Pantelis, Ilias Papadopoulos, Maria Kouli, Irene Georgaki, Filippou Vallianatos et Eleni Kokkinou. 2007. « Investigation of waste disposal areas using electrical methods: A case study from Chania, Crete, Greece ». *Environmental Geology*, vol. 51, n° 7, p. 1249-1261.
- SPIGEC - Saskatchewan Petroleum Industry (Government Environmental Committee). 1999. *Environmental site assessment procedures for upstream petroleum sites*. Guideline no.5. Regina: Saskatchewan Petroleum Industry.
- Standards Australia. 2005. *Guide to the investigation and sampling of sites with potentially contaminated soil*. AS 4482. – 2005. Sydney: Standards Australia.
- Statistique Canada. 2011. « Population urbaine et rurale, par province et territoire (Canada) ». En ligne. < <http://www40.statcan.gc.ca/l02/cst01/demo62a-fra.htm?sdi=population> >.
- Taylor, P.D., M.H. Ramsey et P.J. Potts. 2004. « Balancing measurement uncertainty against financial benefits: Comparison of in situ and ex situ analysis of contaminated land ». *Environmental Science and Technology*, vol. 38, n° 24, p. 6824-6831.
- TRNEE - Table ronde nationale sur l'environnement et l'économie. 2003. *Réhabiliter le passé, construire l'avenir : une stratégie nationale des sites urbains réhabilitables pour le Canada*. Ottawa: TRNEE.

UNFPA - Fonds des Nations Unis pour la population. 2007. *État de la population mondiale 2007: Libérer le potentiel de la croissance urbaine*. New York: Fonds des Nations Unis pour la population.

USACE - United States Army Corps of Engineers. 1998. *Technical Project Planning (TPP) Process*. EM 200-1-2. Washington: USACE.

USDOE - United States Department of Energy. 1998. *Expedited Site Characterization : Characterization, Monitoring, and Sensors Technology Crosscut Program and Subsurface Contaminants Focus Area*. DOE/EM-0420. United States: USDOE.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 1989. *Soil sampling quality assurance user's guide. Second edition*. EPA/600/8-69/046. Washington DC: USEPA.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 2001. *Guidance on data quality indicators*. EPA QA/G-5i. Washington DC: USEPA.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 2002. *Guidance on choosing a sampling design for environmental data collection for use in developing a quality assurance project plan*. EPA QA/G-5S. Washington DC: USEPA.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 2008. « Demonstrations of Method Applicability under a Triad Approach for Site Assessment and Cleanup - Technology Bulletin ». États-Unis.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 2010. « Best Management Practices: Use of Systematic Project Planning Under a Triad Approach for Site Assessment and Cleanup ». États-Unis.

USEPA - United States Environmental Protection Agency. 2011. *Soil sampling*. SESDPROC-300-R2. Washington DC: USEPA.

Van Meirvenne, M., et P. Goovaerts. 2001. « Evaluating the probability of exceeding a site-specific soil cadmium contamination threshold ». *Geoderma*, vol. 102, n° 1-2, p. 75-100.

Véron, Jacques. 2007. « La moitié de la population mondiale vit dans en ville ». *Population & Sociétés*, vol. 435.

- Verstraete, S., et M. Van Meirvenne. 2008. « A multi-stage sampling strategy for the delineation of soil pollution in a contaminated brownfield ». *Environmental Pollution*, vol. 154, n° 2, p. 184-191.
- Wisbrun, R., R. Niessner et H. Schroder. 1993. « Laser-induced breakdown spectrometry as a fast screening sensor for environmental analysis of trace amounts of heavy metals in soils ». *Analytical Methods and Instrumentation*, vol. 1, n° 1, p. 17-22.
- Woll, B., J. Mack, F. Ellerbusch et J.R. Vetter. 2003. « Facilitating brownfields transactions using Triad and environmental insurance ». *Remediation Journal*, vol. 13, n° 2, p. 113-130.
- Zappa, G., R. Bersezio, F. Felletti et M. Giudici. 2006. « Modeling heterogeneity of gravel-sand, braided stream, alluvial aquifers at the facies scale ». *Journal of Hydrology*, vol. 325, n° 1-4, p. 134-153.